Realisierung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle mit verspannungsinduziert platzierten Quantenpunkten

vorgelegt von
Dipl.-Phys. Waldemar Unrau
aus Karasu

von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften
- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:
Vorsitzender: Prof. Dr. Michael Lehmann
Berichter/Gutachter: Prof. Dr. Dieter Bimberg
Berichter/Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Christen

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 10.03.2015

Berlin 2015
D 83

Kurzfassung

Die Quantenkommunikation ist eine zukunftsweisende Technologie des 21. Jahrhunderts. Basierend auf einem fundamentalen Prinzip, dem No-Cloning-Theorem, verspricht sie eine absolut abhörsichere Kommunikation auch innerhalb bestehender optischer Netzwerke. Immer mehr Forschungsgruppen und zunehmend auch kommerzielle Anbieter arbeiten an der Entwicklung von Einzelphotonenquellen zur Erzeugung von Qubits, der Informationseinheit in der Quantenkommunikation.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Herstellung und Charakterisierung von quantenpunktbasierten Einzelphotonenquellen im AlGaAs/GaAs-Materialsystem. Zwei Forschungsziele standen im Vordergrund: Die Steigerung der Auskoppeleffizienz und die Realisierung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle mit einem vorpositionierten Quantenpunkt. Grundlegend hierzu war eine Weiterentwicklung der Technologiebasis, neues Layout des Bauelements und der Einsatz einer auf der Finiten-Differenzen-Methode basierten Simulationssoftware.

Die Steigerung der Auskoppeleffizienz gelang durch die Einbettung des Emitters in einen Resonator. Der Einfluss wurde anhand einer systematischen Veränderung der Resonatorgüte studiert. Die Quantenemitter konnten gepulst bis zu einer Frequenz von 1 GHz betrieben werden. Die durchgeführten Simulationsrechnungen zur adiabatischen Auskopplung der Emission mittels niedrigbrechender oxidierter Schichten sagen eine Steigerung der Auskoppeleffizienz und der spektralen Breite der Auskopplung gegenüber einer Resonant Cavity LED voraus.

Der Einsatz von vorpositionierten Quantenpunkten auf einem invasiv nanostrukturierten Substrat in einer pin-Diodenstruktur konnte erstmalig erfolgreich umgesetzt werden. Ein weiteres, neuartiges Positionierungsverfahren wurde im Rahmen dieser Arbeit mitentwickelt und zum ersten Mal in einem elektrisch betriebenen Bauelement erfolgreich eingesetzt. Das Verfahren kommt ohne Beschädigung der Oberfläche aus und verbindet damit die Vorteile der Vorpositionierung mit den hervorragenden Eigenschaften selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte. Die Vermessung mittels hochauflösender μEL-Spektroskopie und HBT-Interferometrie ergaben Linienbreiten der Quantenpunktemission bis 25 μeV und ein Antibunching der Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung von $g^{(2)}(0) = 0{,}05$. Diese Werte sind vergleichbar mit den besten Resultaten selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte. Das neue Positionierungsverfahren wäre eine Möglichkeit, zukünftig kostengünstige Quantenemitter hoher Güte in der Massenproduktion herzustellen.

Abstract

The ultimate security of a communication channel can only be provided by using quantum cryptography and quantum information units - qubits. Qubits are quantum-mechanical two-state systems and due to a fundamental principle - the no-cloning theorem - in general cannot be copied. Single polarized photons may be used as qubits. The development of a light source with nonclassical photon statistics succeeded in 1974, 14 years after the first laser emission. The first integrated and electrically driven single photon emitter was presented in 2001 [1]. The photon source was an InAs quantum dot embedded in a GaAs-based PIN diode structure.

Reliable, fast and integrated single photon emitters are only at the beginning of their development. The presented work adds a further element to the results of global research in the area of quantum dot-based single-photon emission in AlGaAs/GaAs material system. Two core objectives were aimed as the main fields of research: the enhancement of the outcoupling efficiency and the realization of an electrically driven single photon source with a site-controlled quantum dot. Vital development of the processing technology, new device layout and implementation of a finite-difference time-domain simulation software were basic prerequisites.

The enhancement of outcoupling efficiency was achieved by embedding the emitter in a resonant cavity. The influence was studied by a systematic change of the resonator quality factor. The device could be driven at pumping rates up to 1 GHz. Simulations of adiabatic expansion of the light field into oxidized low refractive index layers predict an even higher extraction efficiency and enhanced spectral width of the extraction compared with RCLED design.

In this work, the positioning of quantum dots on a invasive nanostructured substrate was successfully implemented in a PIN diode structure. A different, novel method for site-controlled quantum dot growth was co-developed and successfully implemented in an electrically driven device for the first time. Strain is generated by buried oxidized apertures on the growth surface, these strain anomalies serve as nucleation sites for the subsequent quantum dot growth. The process does not damage the surface and thus combines the advantages of site-control with excellent features of self-organized quantum dots. High resolution μEL spectroscopy and HBT interferometry revealed line widths of the quantum dot emission up to 25 μeV and antibunching of the second order autocorrelation function to $g^{(2)}(0) = 0.05$. These results are comparable with the best values for self-organized quantum dots. In the future, the new site-control technique would allow mass production of cost efficient high quality quantum emitters.

Publikationen

Teile dieser Arbeit wurden bereits in folgenden Artikeln publiziert:

1. D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann, A. Schliwa, J. A. Töfflinger, **W. Unrau**, M. Munnix, S. Rodt, V. Haisler, A. Toropov, A. Bakarov und A. Kalagin, „Quantum Dots for Single- and Entangled-Photon Emitters," *IEEE Photonics Journal*, Vol. 1, Nr. 1, S. 58-68, 2009.

2. A. Lochmann, E. Stock, J. Töfflinger, **W. Unrau**, A. Toropov, A. Bakarov, V. Haisler und D. Bimberg, „Electrically pumped, micro-cavity based single photon source driven at 1 GHz," *Electronics Letters*, Vol. 45, Nr. 11, S. 566, 2009.

3. A. Lochmann, E. Stock, M. C. Münnix, J. A. Töfflinger, **W. Unrau**, A. Toropov, A. Bakarov, V. Haisler und D. Bimberg, „Cavity-enhanced emission in electrically driven quantum dot single-photon-emitters," *Photonic Materials, Devices, and Applications III, SPIE Europe Microtechnologies, Dresden, Deutschland*, S. 736604, 2009.

4. D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann, A. Schliwa, **W. Unrau**, M. Münnix, S. Rodt, A. I. Toropov, A. Bakarov, A. K. Kalagin und V. A. Haisler, „Quantum dots for single and entangled photon emitters," *Quantum Dots and Nanostructures: Synthesis, Characterization, and Modeling VII, SPIE San Francisco, California, USA*, S. 76100G, 2010.

5. E. Stock, **W. Unrau**, A. Lochmann, J. A. Töfflinger, M. Öztürk, A. I. Toropov, A. K. Bakarov, V. A. Haisler und D. Bimberg, „High-speed single-photon source based on self-organized quantum dots," *Semiconductor Science and Technology*, Vol. 26, Nr. 1, S. 014003, 2011.

6. A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, **W. Unrau**, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg und V. Haisler, „Lateral positioning of InGaAs quantum dots using a buried stressor," *Applied Physics Letters*, Vol. 100, Nr. 9, S. 093111, 2012.

7. A. Strittmatter, A. Holzbecher, A. Schliwa, J.-H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, **W. Unrau**, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg und V. Haisler, „Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers,"

physica status solidi (a), Vol. 209, Nr. 12, S. 2411-2420, 2012.

8. **W. Unrau**, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl und D. Bimberg, „Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection," *Applied Physics Letters*, Vol. 101, Nr. 21, S. 211119, 2012.

9. **W. Unrau** und D. Bimberg, „Flying qubits and entangled photons," *Laser & Photonics Reviews*, Vol. 8, Nr. 2, S. 276-290, 2013.

10. U. W. Pohl, A. Strittmatter, J.-H Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, **W. Unrau**, T. Heindel, O. Hitzemann, D. Bimberg und S. Reitzenstein, „Self-aligned quantum-dot growth for single-photon sources," *25th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM), Kobe, Japan*, S. 1-2, 2013.

Weitere Publikationen

1. B. E. Schmidt, **W. Unrau**, A. Mirabal, S. Li, M. Krenz, L. Wöste und T. Siebert, „Poor man's source for sub 7 fs: a simple route to ultrashort laser pulses and their full characterization," *Optics Express*, Vol. 16, Nr. 23, S. 18910, 2008.

2. P. Moser, P. Wolf, A. Mutig, G. Larisch, **W. Unrau**, W. Hofmann und D. Bimberg, „85°C error-free operation at 38 Gb/s of oxide-confined 980-nm vertical-cavity surface-emitting lasers" *Applied Physics Letters*, Vol. 100, Nr. 8, S. 081103, 2012.

3. P. Wolf, P. Moser, G. Larisch, M. Kroh, A. Mutig, **W. Unrau**, W. Hofmann und D. Bimberg, „High-performance 980 nm VCSELs for 12.5 Gbit/s data transmission at 155°C and 49 Gbit/s at -14°C," *Electronics Letters*, Vol. 48, Nr. 7, S. 389, 2012.

4. W. Hofmann, P. Moser, A. Mutig, P. Wolf, **W. Unrau** und D. Bimberg, „980-nm VCSELs for optical interconnects at 25 Gb/s up to 120 °C and 12.5 Gb/s up to 155 °C," *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), Baltimore, USA*, S. 1-2, 2011.

5. W. Hofmann, P. Wolf, P. Moser, G. Larisch, **W. Unrau**, A. Mutig, M. Kroh und D. Bimberg, „High-speed temperature-stable 980-nm VCSELs," *23nd IEEE International Semiconductor Laser Conference (ISLC)*, S. 161-162, 2012.

6. P. Moser, P. Wolf, J. A. Lott, G. Larisch, A. Payusov, A. Mutig, **W. Unrau**, N. N. Ledentsov, W. Hofmann und D. Bimberg, „High-speed VCSELs for energy efficient computer interconnects," *Semiconductor Lasers and Laser Dynamics V, Brussels, Belgien*, S. 843202, 2012.

7. W. H. Hofmann, P. Moser, P. Wolf, G. Larisch, **W. Unrau** und D. Bimberg, „980-nm VCSELs for optical interconnects at bandwidths beyond 40 Gb/s," *Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers XVI, San Francisco, California, USA*, S. 827605-9, 2012.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis **x**

1 Einleitung **1**

2 Grundlagen **3**
2.1 Photonenstatistik 3
2.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung 5
2.3 No-Cloning-Theorem und Quantenkommunikation 9
2.4 Halbleiterquantenpunkte als Einzelphotonenemitter 13
2.4.1 Ansätze zur Erzeugung einzelner Photonen 13
2.4.2 Niederdimensionale Halbleiterstrukturen 15
2.4.3 Elektronische und optische Eigenschaften von Quantenpunkten 17
2.5 Wechselwirkung mit einem Mikroresonator 25
2.6 Einsatz von Mikrolinsen in elektrisch betriebenen Einzelphotonenemittern 28

3 Design und Modellierung elektrisch betriebener Bauelemente **31**
3.1 Grundstruktur 31
3.2 Resonatorbasiertes Design 34
3.3 Vorpositionierte Quantenpunkte 36
3.3.1 Modellierung des Verspannungsfeldes zur Anordnung von Quantenpunkten 36
3.3.2 Layout eines elektrisch gepumpten Bauelements mit platzierten Quantenpunkten 40
3.4 Mikrolinsen 44
3.5 Steigerung der Auskoppeleffizienz durch adiabatische Expansion 46
3.5.1 Simulationssoftware 47
3.5.2 Validierung des Programmpakets anhand einer analytischen Lösung 48
3.5.3 Simulation einer Resonant Cavity LED-Mesenstruktur . 50
3.5.4 Simulation einer adiabatischen Auskopplung 52
3.5.5 Modellierung optimaler Parameter 55

4 Wachstum und Herstellung elektrisch kontaktierbarer Bauelemente **59**
4.1 Verwendete Wachstumsverfahren zur Schichtstrukturherstellung 59
4.1.1 Molekularstrahlepitaxie 60
4.1.2 Metallorganische Gasphasenepitaxie 60

4.2 Herstellung eines Mikroresonators 61
4.3 Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte 62
4.3.1 Quantenpunktwachstum auf vorstrukturiertem Substrat 64
4.4 Prozesstechnologie 65
4.4.1 Prozessfluss einer Resonant Cavity LED 66
4.4.2 Herstellungsprozess einer LED mit verspannungsinduziert positionierten Quantenpunkten 71
4.4.3 Optische Lithographie 76
4.4.4 Plasmaätzverfahren 77
4.4.5 Nasschemische selektive Oxidation von aluminiumhaltigen Schichten 82
4.4.6 Abscheiden dielektrischer Schichten 92
4.4.7 Kontaktmetallisierung 93

5 Angewandte Messverfahren zur Untersuchung von Einzelphotonenemittern 97
5.1 Detektion einzelner Photonen 98
5.2 Mikroelektrolumineszenz- und Autokorrelationsmessaufbau . . 100

6 Experimentelle Ergebnisse 105
6.1 Elektrisch betriebene Resonant Cavity LED 105
6.2 Einfluss des Gütefaktors auf die Resonant Cavity LED 110
6.3 Positionierung von Quantenpunkten auf lokal strukturiertem Substrat 116
6.4 Bauelemente mit verspannungsinduzierter Quantenpunktpositionierung 120

7 Zusammenfassung 127

8 Ausblick 131

Literaturverzeichnis xi

Abkürzungsverzeichnis

(μ)EL	(Mikro)Elektrolumineszenz
(μ)PL	(Mikro)Photolumineszenz
Al(Ga)As	Aluminium(gallium)arsenid
APD	Avalanche-Photodiode
CCD	Charge-Coupled Device
CL	Kathodolumineszenz
cw	continuous waveform engl. für Dauerstrichemission
DBR	Distributed Bragg Reflector, engl. für Bragg-Spiegel
FDTD	Finite Difference Time Domain, engl. für Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich
GaAs	Galliumarsenid
GSG	Ground Signal Ground
HBT	Hanbury Brown-Twiss
HMDS	Hexamethyldisilazan
ICP RIE	Inductively Coupled Plasma Reactive Ion Etching, engl. für induktiv gekoppeltes Plasmaätzen
In(Ga)As	Indium(gallium)arsenid
LB	Leitungsband
MBE	Molekularstrahlepitaxie
MOCVD	metallorganische chemischen Gasphasenabscheidung
MOVPE	metallorganische Gasphasenepitaxie
NA	numerische Apertur
NMP	N-Methyl-2-pyrrolidon
PECVD	plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung
PML	Perfectly Matched Layers
PMMA	Polymethylmethacrylat
QP	Quantenpunkt
RCLED	Resonant Cavity LED
REM	Rasterelektronenmikroskop
RIE	Reactive Ion Etching, engl. für Plasmaätzen
Si_3N_4	Siliziumnitrid
SPAD	Single-Photon Avalanche Diode
SPS	Single Photon Source
UV	Ultraviolett
VB	Valenzband
VCSEL	Vertical Cavity Surface Emitting Laser

1 Einleitung

Mit riesigen Schritten ist die Menschheit im Informationszeitalter angekommen. Entwicklung, die mit einem 800 Gramm schweren Motorola DynaTAC begann, mündet nun in ultraleichten Smartphones, die nur aufgrund ihrer Größe von einem PC unterschieden werden können. Hatte das Arphanet im Jahre 1971 15 Knoten, so wurden im Juli 2013 knapp eine Milliarde im Internet erreichbare Hostrechner gezählt [2]. Das klassische Kino und Fernsehen wird durch IPTV und Home Cinema abgelöst, neue Formate wie High-motion, 3DTV, 4K UHD oder 8K UHD werden verabschiedet und implementiert. Weltweit sind mittlerweile 6,6 Mrd. Mobilfunkanschlüsse registriert [3]. Smartphones mit LTE ermöglichen einen noch schnelleren Internetzugang, damit wird der Kommunikationskanal Mobilfunk um schier unbegrenzte Möglichkeiten erweitert: das gesamte Wissen der Welt auf Abruf mit Wikipedia, immer aktuell am Puls der Zeit mit Twitter, weltweit vernetzt mit Facebook, WhatsApp, Skype, Youtube, Flickr, Instagram und vielen anderen. Zusätzlich wird die ehemalige Zukunftsvision des „Internet der Dinge“ immer mehr Realität. Vernetzte intelligente Geräte nehmen im Smart Metering, Smart Grid, Smart Home und Smart Car immer mehr Einzug in das alltägliche Leben.

Doch neben den technologischen Herausforderungen wie höhere Bandbreite und Speicherkapazität rückt zunehmend das Problem der Informationssicherheit in den Vordergrund. Es entstand keinesfalls in der neuzeitigen Informationsflut, sondern begleitete die Menschheit seit Anbeginn. Der bekannteste dokumentierte Fall von Kommunikationsverschlüsselung im Altertum ist die Cäsar-Chiffre. Dieses monographische und monoalphabetische Substitutionsverfahren wurde von Gaius Julius Caesar zur Verschlüsselung von militärischen Nachrichten angewandt. Weitere nennenswerte Verbesserung der Verschlüsselungssicherheit gelang mit der Entwicklung der Vigenère-Chiffre im 16. Jahrhundert, die fast 300 Jahre als unknackbar galt. Die Verschlüsselung von Depeschen im Ersten Weltkrieg wurden zum ersten Mal durch speziell fürs Dechiffrieren gebildeten Einheiten gebrochen. Dieses Wettrüsten setzte sich auch im Zweiten Weltkrieg fort, allerdings standen nun den Alliierten elektromechanische Maschinen zur Verfügung. Kurz nach dem Krieg zeigte Claude Shannon [4], dass das von Gilbert Vernam entwickelte Einmalschlüssel-Verfahren, auch One-Time-Pad genannt, kryptographisch sicher ist, falls gilt:

- der Schlüssel und die Nachricht haben gleiche Länge,
- der Schlüssel ist zufällig gleichverteilt,
- der Schlüssel wird nicht wiederverwendet,
- der Schlüssel ist geheim.

Während die ersten zwei Bedingungen relativ einfach durch echte Zufallsgeneratoren für Schlüsselerzeugung erfüllt werden können, z. B. durch rauschende Bauelemente wie Avalanche-Dioden, thermisch rauschende Widerstände oder Zerfallsereignisse einer radioaktiven Quelle, und die dritte Bedingung ein reines Implementierungsproblem darstellt, so stellt die Geheimhaltung des Schlüssels die größte Schwierigkeit dar. Das Problem der abhörsicheren Nachrichtenübertragung wird zum Problem der abhörsicheren Schlüsselübertragung. Auf den ersten Blick hat sich die Situation nicht verbessert, doch beim genaueren Hinsehen wird eine grundlegende Veränderung deutlich: ein abgefangener Schlüssel bedeutet im Gegensatz zu einer Nachricht noch kein Informationsverlust. Klassisch kann dieser Vorteil nicht ausgenutzt werden, aber die Quantenwelt verhält sich anders. Die Grundlage der Quantenkryptographie ist das im Jahre 1982 von Wootters und Zurek aufgestellte No-Cloning-Theorem [5], welches besagt, dass ein willkürlicher Quantenzustand nicht kopiert werden kann. Jeglicher Versuch, Schlüsselübertragung in einem Quantenkanal zu belauschen führt damit unweigerlich zu einer Veränderung der übertragenen Quantenzustände und diese Veränderungen sind messtechnisch zugänglich. Es ist also möglich festzustellen, ob die Schlüsselübertragung belauscht wurde und ein Schlüssel kompromittiert ist. Ist dies nicht der Fall, so kann der Schlüssel zur One-Time-Pad-Verschlüsselung verwendet und die verschlüsselte Nachricht über ein unsicheres Medium übertragen werden. Korrekte technische Implementierung vorausgesetzt, ist eine derartige Quantenkommunikation kryptographisch sicher.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Entwicklung halbleiterbasierter mikroelektronischer Bauelemente zur *on demand*-Erzeugung kleinster Informationseinheiten der Quantenkommunikation, den Qubits. Sie ist in acht Kapitel gegliedert. Nach der Einleitung werden im zweiten Kapitel die theoretischen Grundlagen der Quantenstatistik und die Protokolle zur Quantenschlüsselübertragung behandelt. Im dritten Kapitel sind die Möglichkeiten zur Qubit-Erzeugung und Eigenschaften von Quantenpunkten (QP, auch QD für engl. quantum dot) sowie unterschiedliche Bauelementdesigns und deren Einfluss auf die Auskoppeleffizienz dargestellt. Das vierte Kapitel behandelt die Wachstumsmechanismen von Quantenpunkten, die Möglichkeiten deterministischer Nukleation und die Entwicklung der Herstellungstechnologie elektrisch betriebener Bauelemente. Anschließend sind die verwendeten Messverfahren und die Ergebnisse der Messungen an Quantenpunkt-LEDs in den Kapiteln fünf und sechs dargestellt. Zuletzt wird eine kurze Zusammenfassung und Ausblick gegeben.

2 Grundlagen

2.1 Photonenstatistik

Ein Lichtstrom besteht aus Lichtquanten des elektromagnetischen Feldes, den Photonen. Die Anzahl von Photonen in einem Zeitintervall kann mit einer Wahrscheinlichkeitsverteilung dargestellt werden. Ist die Photonenemission ein rein stochastischer Prozess mit einer konstanten Rate, so kann das Auftreten eines Photons in einem Intervall als Bernoulli-Experiment betrachtet werden, wenn das Intervall klein genug gewählt wird. Es ergibt sich ein Spezialfall der Binomialverteilung mit einem einzigen Versuch. Beim Grenzwertübergang zu einem unendlich kleinen Intervall $\Delta t \to 0$ geht die Wahrscheinlichkeit für ein Photon in diesem Intervall auch gegen Null, $p \to 0$. Wenn aber der Quotient $p/\Delta t$ beim Grenzwertübergang gegen einen endlichen Grenzwert $p/\Delta t \to \lambda$ strebt, dann nähert sich die Binomialverteilung der Poisson-Verteilung mit dem Erwartungswert λ an. Bei einer Lichtquelle ist dieser Erwartungswert proportional zur Intensität.

Die Abbildung 2.1 zeigt einen simulierten Poisson-Prozess zufällig auftretender Ereignisse mit einer konstanten Rate. Die Wahrscheinlichkeit für mögliche Ereignisse in einem Zeitintervall und die Statistik der Zeitabstände zweier Ereignisse in der Simulation sind in Abb. 2.2 dargestellt.

Die Zeitabstände Δt zweier aufeinanderfolgender Ereignisse eines Poisson-Prozesses der Rate λ werden durch eine Exponentialverteilung beschrieben. Die Rate geht in die Wahrscheinlichkeitsdichte W der Verteilung ein:

$$W(\Delta t, \lambda) = \lambda e^{-\lambda \Delta t} \,. \tag{2.1}$$

Die Anzahl der Ereignisse n pro Zeitintervall eines Poisson-Prozesses folgt der Poisson-Verteilung:

$$W(n, \lambda) = \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} \,. \tag{2.2}$$

Sie zeichnet sich dadurch aus, dass die Varianz σ^2 gleich dem Erwartungswert $\langle n \rangle$ ist. Lichtquellen können nach diesem Merkmal differenziert werden: Ist

Abbildung 2.1: Zeitliche Folge von Photonen generiert durch einen rein stochastischen Prozess.

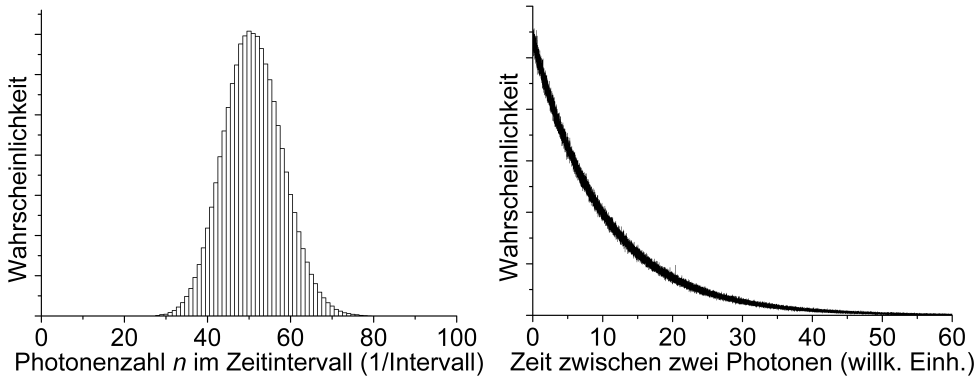


Abbildung 2.2: Links: Die Wahrscheinlichkeit, n Photonen in einem definierten Zeitintervall zu finden. Im vorliegenden Fall eines Poisson-Prozesses wurde in den meisten Zeitintervallen 50 Photonen gemessen. Die Verteilung folgt einer Poisson-Statistik, welche für große Erwartungswerte $\lambda > 30$ in guter Näherung durch eine Gauß-Verteilung dargestellt werden kann. Rechts: Hier wird als Ereignis nicht die Anzahl von Photonen, sondern die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Photonen betrachtet. Dargestellt ist die statistische Häufigkeit der Zeitdifferenzen, im Mittel sind zwei dicht aufeinander folgende Photonen am Wahrscheinlichsten. Die Verteilung ist exponentiell.

die Varianz der Photonenstatistik kleiner oder größer als der Erwartungswert, dann bezeichnet man die Quelle als Sub-Poisson- oder Super-Poissonverteilt. Die Photonenstatistik der gezeigten Simulation einer stochastischen Lichtquelle stimmt mit der quantenstatistischen Analyse eines Lasers überein [6]. Die Poisson-Statistik des Laserlichts wird also durch die Quantennatur des Lichts und die zufällige Photonenemission bedingt. Die Fluktuation der Intensität ist das Photonen-Schrotrauschen, es bildet das untere Rauschlimit einer klassischen Quelle.

Bei einem thermischen Strahler mit der mittleren Photonenrate λ folgen die Photonen der Bose-Einstein-Statistik. Die Gleichung (2.3) beschreibt die Wahrscheinlichkeit, n Photonen in einem Zeitintervall zu finden:

$$W(n, \lambda) = \frac{\lambda^n}{(1+\lambda)^{n+1}} \,. \tag{2.3}$$

Die Varianz σ^2 der Photonenzahl n im betrachteten Zeitintervall ist gegeben durch:

$$\sigma^2 = \langle n \rangle + \langle n \rangle^2 \,. \tag{2.4}$$

Verglichen mit einer kohärenten Quelle ist die Varianz größer, eine thermische Quelle ist Super-Poissonverteilt. Die Varianz besteht wieder aus dem Schrotrauschen zufällig emittierter Photonen $\langle n \rangle$ und einem zweiten Summand $\langle n \rangle^2$, der für stärkere Fluktuation der Intensität sorgt. Seine Ursache liegt in der Wellennatur des Lichts. Überlagern sich zwei zufällige Photonen innerhalb ihrer

Kohärenzzeit, so kommt es zu Interferenzeffekten, die als zusätzliche Intensitätsschwankungen auf der Zeitskala der Kohärenzzeit wahrgenommen werden. Die Interferenzbeiträge mitteln sich raus wenn die Integrationszeit des Detektors länger als die mittlere Kohärenzzeit ist und die Bose-Einstein-Statistik geht in die Poisson-Statistik über.In der Abbildung 2.3 sind die Verteilungen für einfache bis fünfhundertfache Integrationszeit bezogen auf die Kohärenzzeit t_c dargestellt. Der Erwartungswert $\langle n \rangle$ und die Photonenzahl sind gleich.

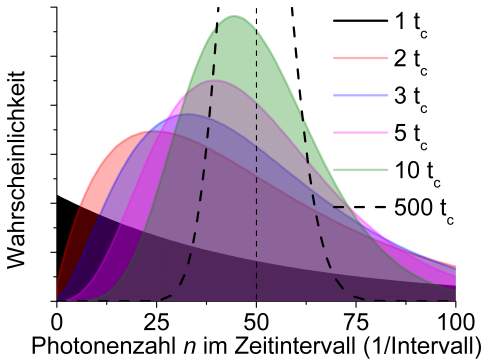


Abbildung 2.3: Wahrscheinlichkeit, n Photonen einer thermischen Quelle innerhalb eines Zeitintervalls zu finden. Der Erwartungswert $\langle n \rangle$ liegt bei 50. Variiert wurde die Länge des Zeitintervalls bezüglich der Kohärenzzeit. Die Interferenz von Wellenzügen innerhalb der Kohärenzzeit führt zu zusätzlichen Fluktuationen der Intensität und somit zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Verteilung. Eine solche Quelle ist also super-Poissonverteilt. Ist die Integrationszeit des Detektors (= Zeitintervall) größer als die Kohärenzzeit der Photonen, dann mitteln sich die Interferenzbeiträge weg und die Verteilung geht in die Poisson-Verteilung über.

Als nichtklassisch bezeichnet man Lichtquellen, deren Verhalten nicht mit klassischer Elektrodynamik beschrieben werden kann, sondern Quantisierungseffekte des Feldes einbezogen werden müssen, z. B. Lichtemitter mit gequetschtem Phasen- oder Amplitudenrauschen oder Einzelphotonenemitter. Amplitudengequetschte Quellen weisen eine Varianz σ^2 auf, die kleiner ist als die einer Poisson-Verteilung, sie werden auch als Sub-Poissonverteilt bezeichnet. Diese Eigenschaft trifft auch auf die meisten, jedoch nicht alle, Einzelphotonenemitter zu.

2.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Ein einzelnes Photon ist ein Qubit und kann zur Übertragung von Quantenzuständen benutzt werden. Die Erzeugung von einzelnen Photonen ist im Jahre 1977 in Resonanzfluoreszenz-Experimenten an Natriumatomen gelungen [7]. Der Nachweis einer neuartigen nichtklassischen Photonenquelle wurde durch Korrelationsmessungen von Photonen erbracht. Im Folgenden sollen die Korrelationsarten kurz erläutert werden.

Unter einer Einzelphotonenquelle (im Folgenden SPS, engl. Single Photon Source) versteht man eine Lichtquelle, bei der die Wahrscheinlichkeit nach einem Photon ein zweites zum Zeitpunkt $t + \tau$ zu finden um so geringer ist, je kleiner das Intervall τ ist. Das Phänomen wird als Antibunching von Photonen, also das Vermeiden von Photonenanhäufungen, bezeichnet.

Im Hinblick auf die spätere Charakterisierung einer Lichtquelle als Einzelphotonenemitter ist eine Untersuchung der Photonenverteilung nicht ausreichend. Wie von Singh [8] gezeigt, muss eine SPS eine Sub-Poisson-Statistik nicht aufweisen. Eine andere statistische Analyse, die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung, ermöglicht eine quantitative Beschreibung der Güte einer SPS. Dabei wird die Intensität der Quelle zum Zeitpunkt t mit der Intensität zum Zeitpunkt $t + \tau$ korreliert:

$$\langle I(t)I(t+\tau)\rangle \ . \tag{2.5}$$

Der Erwartungswert bedeutet eine Mittelwertbildung über alle Zeiten t. Nach der Normierung erhält man die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau)\rangle}{\langle I(t)\rangle^2} = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t)\rangle}{\langle E^*(t)E(t)\rangle^2} \ . \tag{2.6}$$

Hierbei sind E und E^* die komplexe und die konjugiert-komplexe elektrische Feldstärke. Bezogen auf eine SPS beschreibt $g^{(2)}(\tau)$ die auf einen stochastischen Prozess normierte Wahrscheinlichkeit, ein zweites Photon zum Zeitpunkt $t + \tau$ zu finden, wenn zuvor zum Zeitpunkt t ein Photon auftrat. Die Funktion ist symmetrisch, es gilt $g^{(2)}(\tau) = g^{(2)}(-\tau)$. Für Zeitabstände $\tau \gg \tau_c$, die deutlich größer sind als die Kohärenzzeit τ_c, nähert sie sich der Eins. Für kurze Zeiten $\tau \ll \tau_c$ kann die Autokorrelationsfunktion durch den Erwartungswert und die Varianz der Photonenzahl beschrieben werden:

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\sigma^2 - \langle n\rangle}{\langle n\rangle^2} \ . \tag{2.7}$$

Damit ergibt sich unter Verwendung von $\sigma^2 = \langle n\rangle + \langle n\rangle^2$ für eine thermische Lichtquelle $g^{(2)}(0) = 2$. Die Abbildung 2.4 zeigt die Korrelationsfunktion einer thermischen Quelle für zwei Verbreiterungsmechanismen. Endliche Lebensdauer der Energiezustände und Stoßverbreiterung führen zu einer homogenen Linienverbreiterung (Lorentz-Profil) und die thermische Geschwindigkeitsverteilung der Atome zur Dopplerverbreiterung (inhomogen, Gauß-Profil). Die höhere Wahrscheinlichkeit $g^{(2)}(0) > 1$ zum Zeitpunkt $\tau = 0$ ein zweites Photon zu detektieren wird als Bunching bezeichnet. Eine Haufenbildung von Photonen auf der Kohärenzzeitskala ist ein typisches Merkmal einer thermischen Lichtquelle.

Analog kann der $g^{(2)}(0)$-Wert für einen Laser aus der Varianz der zugrundeliegenden Poisson-Verteilung $\sigma^2 = \langle n\rangle$ bestimmt werden, man erhält $g^{(2)}(0) = 1$. Damit wird der vollkommenen statistischen Unabhängigkeit des Emissionszeitpunktes eines Photons bei einer stimulierten Emission Rechnung getragen. Zu keinem Zeitpunkt τ gibt es Intensitätskorrelationen.

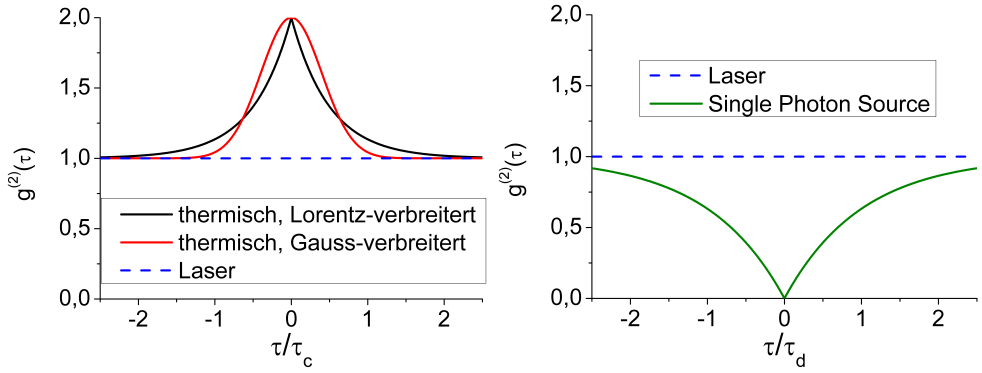


Abbildung 2.4: Links: Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ einer thermischen Quelle in Zeiteinheiten der Kohärenzzeit τ_c. Der unterschiedliche Funktionsverlauf wird durch Mechanismen der homogenen (Lorentz-) oder inhomogenen (Gauß-) Linienverbreiterung verursacht. Verglichen mit einer vollkommen unkorrelierten Quelle (Laser) ist bei einem thermischen Emitter die Wahrscheinlichkeit für gleichzeitige Emission zweier Photonen erhöht. Dieses Verhalten wird als Bunching bezeichnet. Rechts: Korrelationsfunktion einer SPS in Zeiteinheiten der mittleren Lebenszeit τ_d des strahlenden Übergangs. $g^{(2)}(\tau)$-Werte kleiner als Eins können im Rahmen einer klassischen Theorie nicht erklärt werden. Es handelt sich um eine nichtklassische Quelle mit reduzierter Wahrscheinlichkeit für gleichzeitige Emission zweier Photonen. Dieses Verhalten wird als Antibunching bezeichnet.

Im Rahmen der klassischen Theorie führen Intensitätsfluktuationen, die zusätzlich zum Photonenschrotrauschen auftreten, stets zu Bunching, die Funktion $g^{(2)}(\tau)$ wird nie kleiner als Eins. Resonanzfluoreszenzmessungen an einzelnen Atomen [7] haben jedoch gezeigt, dass es nichtklassische Quellen gibt mit deutlich ausgeprägter Antikorrelation $g^{(2)}(\tau) < 1$ für $\tau \to 0$. Eine derartige sequentielle Emission einzelner Photonen wird als Antibunching bezeichnet. Mittlerweile gibt es weitere Möglichkeiten Einzelphotonenemission zu erzeugen, z. B. durch Anregung einzelner Ionen in einer Pauli-Falle, parametrische Fluoreszenz in einem nichtlinearen Kristall, optische Anregung von NV-Zentren im Diamant oder elektrische und optische Anregung von Quantenpunkten in einer Halbleitermatrix. Das Prinzip der Einzelphotonenemission beruht bei den atomartigen Quellen (Ionen, NV-Zentren, Quantenpunkte) auf der Tatsache, dass zur Photonenerzeugung nur eine Elementarquelle zur Verfügung steht. Wird sie angeregt, so kann sie ein Photon emittieren. Die Emission des nächsten Photons ist nur nach einer endlichen Zeit möglich, in der eine erneute optische oder elektrische Anregung stattfindet. Derartige Quellen werden als Einzelphotonenemitter bezeichnet. Deren Güte wird durch die Wahrscheinlichkeit zur Mehrphotonenemission charakterisiert, also durch den Wert der Korrelationsfunktion für $\tau = 0$. Messwerte $g^{(2)}(0) < 1$ sind eine zuverlässige Methode anhand der Emission einen Emitter als Einzelphotonenquelle zu identifizieren.

Die Berechnung der Emissionswahrscheinlichkeit eines zweiten Photons einer SPS ähnelt der Berechnung der Menge von aktiven Kernen eines Tochternuklids in einer Zerfallsreihe. Betrachtet werden die Besetzungswahrscheinlichkeiten ρ_0 und ρ_1 eines Zweiniveausystems, mit Grundzustand $|0\rangle$ und einem angeregten Zustand $|1\rangle$, welcher unter Photonenemission in den Grundzustand übergeht. Für die Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Zustands $|1\rangle$ gilt:

$$\frac{d\rho_1}{dt} = P\rho_0 - R\rho_1, \quad \rho_1 + \rho_0 = 1\,. \tag{2.8}$$

Sie ist proportional zur Pumprate P des Übergangs $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ und zur Rekombinationsrate R des strahlenden Übergangs $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$. Die zweite Beziehung stellt sicher, dass die Gesamtwahrscheinlichkeit des Systems normiert ist. Die Lösung für die Besetzungswahrscheinlichkeit von ρ_1 ist:

$$\rho_1(t) = \frac{P}{R+P}\left(1 - e^{-(R+P)t}\right)\,. \tag{2.9}$$

Mit Hilfe des *quantum regression theorem* von Lax [9] unter der Anfangsbedingung $\rho_1(0) = 0$ kann aus ρ_1 die normierte Korrelationsfunktion zweiter Ordnung bestimmt werden:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-(R+P)\tau}\,. \tag{2.10}$$

Der Verfälschung der Korrelationsfunktion durch stets vorhandene Rauschquellen wie Streulicht oder Dunkelzählrate von Photonendetektoren kann durch einen Fit-Parameter a_{fit} oder gezielte Messung des Signal-Rausch-Verhältnisses $a_{SNR} = (S/(S+N))^2$ begegnet werden:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - a_{(fit/SNR)}e^{-(R+P)\tau}\,. \tag{2.11}$$

Dabei ist S die Signalzählrate und N die Zählrate verursacht durch Rauschquellen [10].

Eine weitere Verfälschung der Korrelationsfunktion kommt durch die Zeitauflösung des Messaufbaus zustande. Diese Unsicherheit der Messung der Photonenankunftszeit wird durch den Detektor und die auswertende Elektronik verursacht. Die Messwertstreuung um einen Mittelwert entspricht einer Gauß-Verteilung, die Breite kann dem Datenblatt des Herstellers entnommen werden. Die endliche Zeitauflösung des Messaufbaus bedeutet eine Faltung des Messsignals mit der Verteilungsfunktion der Zeitauflösung. Der Beitrag zur Korrelationsfunktion kann also bei bekannter Verteilung durch Entfaltung eliminiert werden.

Es sollte noch kurz die zeitliche Korrelationsfunktion erster Ordnung erwähnt werden. Im Gegensatz zur zweiten Ordnung handelt es sich hierbei um Korrelation von Feldern:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E(t+\tau)\rangle}{\langle E^*(t)E(t)\rangle}\,. \tag{2.12}$$

Sie gibt den Grad der Kohärenz eines Wellenzugs zwischen zwei Zeitpunkten t und $t+\tau$ an. Der Wert von $\left|g^{(1)}(\tau)\right|$ liegt zwischen 0 und 1, entsprechend für inkohärentes oder vollständig kohärentes Verhalten. Für einen unendlichen Wellenzug ohne Phasensprünge gilt $\left|g^{(1)}(\tau)\right| = 1$ für alle τ. Dieses Verhalten wird am Besten angenähert durch einen Laser.

Es gibt einen Zusammenhang zwischen $g^{(1)}(\tau)$ und der spektralen Intensitätsverteilung (Wiener-Chintschin-Theorem):

$$F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} g^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \,. \tag{2.13}$$

Für eine thermische Quelle mit großer Anzahl von Atomen besteht ein Zusammenhang mit der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung (Siegert-Relation):

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \left|g^{(1)}(\tau)\right|^2 \,. \tag{2.14}$$

Die Kohärenzzeit τ_c kann durch Messung von $g^{(1)}(\tau)$ bestimmt werden:

$$\tau_c = \int_{-\infty}^{+\infty} \left|g^{(1)}(\tau)\right|^2 d\tau \,. \tag{2.15}$$

2.3 No-Cloning-Theorem und Quantenkommunikation

Die kleinste Informationseinheit in der Quanteninformatik wird analog zum klassischen Bit als Quantenbit, oder auch Qubit bezeichnet. Ein klassisches Bit kann sich in einem von zwei diskreten Zuständen befinden, physikalisch realisierbar als ein Objekt oder Prozess mit bistabiler Konfigurationsmöglichkeit. Ein Bit kann z. B. in einem Flipflop gespeichert werden, zur Informationsübertragung benutzt man Spannungslevel auf elektrischen Leitern (z. B. in TTL-Bauelementen) oder Intensitätsmodulation von Laserlicht für Informationsübertragung durch Glasfaser.

Ein Qubit ist ein Quantensystem, das durch einen Zustand in einem zweidimensionalen Hilbertraum beschrieben wird. Er unterscheidet sich von einem Bit dadurch, dass er auch Superpositionszustände annehmen kann und für seine Messung eine Basis gewählt werden muss, sie jedoch beliebig sein kann, solange die Basiszustände orthogonal sind und den gesamten Zustandsraum aufspannen. Je nach Wahl der Basis kann nach einer Messung der gespeicherte Wert nur über Wahrscheinlichkeiten angegeben oder, wenn der Qubit zufällig ein Eigenzustand der gewählten Messbasis ist, mit Sicherheit bestimmt werden. Der klassische Bit ist somit ein Sonderfall des Qubits.

Seien orthogonale Zustände $|a\rangle$ und $|b\rangle$ Eigenzustände eines Messoperators $M_{a,b}$ und eine Basis des Hilbertraums eines Qubits. Seien weitere Zustände $|\alpha\rangle$ und $|\beta\rangle$ orthogonale Eigenzustände eines Messoperators $M_{\alpha,\beta}$ und ebenfalls eine Basis. Ein Qubit $|\psi\rangle$ kann in der Basis $|a\rangle$, $|b\rangle$ als $|\psi\rangle = 1\,|a\rangle + 0\,|b\rangle$

beschrieben werden, wenn er sich im Zustand $|a\rangle$ befindet. Bei einer Messung werden folgende Wahrscheinlichkeiten für den Qubit $|\psi\rangle$ registriert:

$$1 = |\langle a \,|\, \psi\rangle|^2 \,, \text{ Qubit war im Zustand } |a\rangle \,,$$
$$0 = |\langle b \,|\, \psi\rangle|^2 \,, \text{ Qubit war im Zustand } |b\rangle \,.$$

Bezüglich der Messbasis $|\alpha\rangle$, $|\beta\rangle$ kann der Qubit ausgedrückt werden als $|\psi\rangle = x\,|\alpha\rangle + y\,|\beta\rangle$. Misst man in dieser Basis, so erhält man andere Wahrscheinlichkeiten:

$$|x|^2 = |\langle \alpha \,|\, \psi\rangle|^2 \,, \text{ Qubit war im Zustand } |\alpha\rangle \,,$$
$$|y|^2 = |\langle \beta \,|\, \psi\rangle|^2 \,, \text{ Qubit war im Zustand } |\beta\rangle \,.$$

Damit ist es nicht möglich einen Qubit ohne Kenntnis seiner Basis zuverlässig auszulesen. Kennt man die richtige Messbasis, dann ist das Auslesen realisierbar.

Könnte man den Zustand $|\Psi\rangle$ mit Hilfe eines unitären Operators U kopieren, so wären Messungen von Kopien in allen Basen zugänglich. Bei zwei verschränkten Photonen wäre durch entsprechende Messung des einen Photons und statistische Auswertung der Kopien des anderen Photons an einem anderen Ort überlichtschnelle Kommunikation möglich [11]. Die Auflösung des Paradoxes überlichtschneller Informationsübertragung war einfach und bedeutend zugleich: Ein Quantenzustand kann nicht kopiert werden. Das unter dem Namen No-Cloning-Theorem bekannte Ergebnis wurde 1982 von Wootters und Zurek veröffentlicht [5].

Ein funktionierender Kopieroperator U soll allgemeine Zustände $|\Psi\rangle$ vervielfältigen können, seine Anwendung auf Basiszustände ergibt $|\alpha\rangle \to |\alpha\rangle\,|\alpha\rangle$ und $|\beta\rangle \to |\beta\rangle\,|\beta\rangle$. Für eine allgemeine Superposition $|\Psi\rangle = 1/\sqrt{2}\,(x\,|\alpha\rangle + y\,|\beta\rangle)$ gilt aufgrund der Linearität des Operators:

$$\frac{1}{\sqrt{2}}\,(x\,|\alpha\rangle + y\,|\beta\rangle) \to \frac{1}{\sqrt{2}}\,(x\,|\alpha\rangle\,|\alpha\rangle + y\,|\beta\rangle\,|\beta\rangle) \neq |\Psi\rangle\,|\Psi\rangle \,. \tag{2.16}$$

Ein Zustand kann also in seiner Eigenbasis kopiert werden, ist er eine Linearkombination in dieser Basis, dann ist eine exakte Kopie nicht möglich.

Das No-Cloning-Theorem legt einen wichtigen Grundstein für die Quantenkryptographie, die eine prinzipiell neue Möglichkeit der abhörsicheren Informationsübertragung darstellt. Es wird dabei ein geheimer Schlüssel ausgetauscht, idealerweise eine kryptographisch sichere Zufallszahlenfolge, die dann zur Verschlüsselung nach One-Time-Pad-Verfahren verwendet wird. Das erste Protokoll zur quantenmechanischen Übertragung eines Schlüssels wurde von Bennett und Brassard um 1984 entwickelt [12] und basiert auf linearen Polarisationszuständen einzelner Photonen. Im Folgenden wird das von ihnen entwickelte BB84-Protokoll kurz vorgestellt.

Wie oben gezeigt, ist für die Ausnutzung des No-Cloning-Theorems die Kodierung bezüglich einer Basis nicht ausreichend, denn bei Kenntnis der Basis (z. B.

Tabelle 2.1: Kodierung der Bitwerte eines Qubits in zwei orthogonalen Basen nach BB84-Protokoll.

	Basis 1		Basis 2	
Polarisation des Photons:	0°	90°	−45°	+45°
Bitwert:	0	1	0	1

0°/90°) können Photonen in den beiden orthogonalen Polarisationszuständen sicher kopiert werden. Die Einführung einer zweiten Basis (z. B. ±45°) zur Kommunikation stellt den Angreifer vor die Wahl der Messbasis bei jedem Photon. Ohne die Möglichkeit das Photon zu kopieren, muss er sie raten, was sich als erhöhte Fehlerrate beim Empfänger bemerkbar macht.

Ein Bit wird z. B. bezüglich der 0°/90°- und ±45°-Basis wie in der Tabelle 2.1 kodiert. Die Wahl der Basis und des Bitwerts sind zufällig. Der Empfänger kann mit einem polarisationstrennenden Strahlteiler den Bitwert innerhalb einer Basis messen, die richtige Basis kennt er aber nicht und muss sie zufällig wählen.

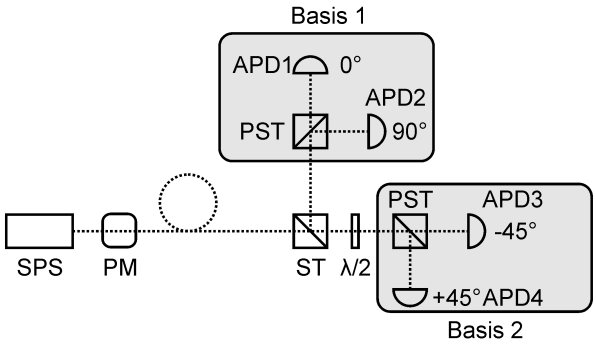


Abbildung 2.5: Aufbau zur quantenmechanischen Schlüsselübertragung nach BB84-Protokoll. Die Senderseite besteht aus einer Einzelphotonenquelle (SPS) und Polarisationsmodulator (PM). Die Empfängerseite wird durch einen Strahlteiler (ST) in zwei Teilstrahlen mit unterschiedlicher Basis aufgeteilt. die $\lambda/2$-Platte verändert die Detektionsbasis in einem Teilstrahl um 45°. Die Polarisationsstrahlteiler (PST) leiten die 0°/90° bzw. $-45°/+45°$-Polarisationszustände zu den APDs.

In der Abbildung 2.5 ist ein schematischer Aufbau zur quantenmechanischen Schlüsselübertragung nach BB84-Protokoll dargestellt. Der Aufbau beinhaltet eine Sender- und eine Detektoreinheit. Die Sendereinheit besteht aus einer Einzelphotonenquelle (SPS) und einem Polarisationsmodulator (PM). Die linear polarisierte Emission der Einzelphotonenquelle wird durch den Polarisationsmodulator gedreht, so dass beide Basen und Bitwerte eingestellt werden können. Die Detektoreinheit beinhaltet einen 50:50-Strahlteiler (ST), eine $\lambda/2$-Platte zur Drehung der Polarisationsebene um 45°, zwei Polarisationsstrahlteiler (PST)

Tabelle 2.2: Der Empfänger detektiert Einzelphotonenereignisse auf den APDs 1 bis 4 und protokolliert die zufällig gewählte Messbasis und den Bitwert: s bedeutet senkrechte Basis (0°/90°), d - diagonale Basis (±45°). Die Zeile „Basis“ und zugehörige Zeitindizes („Photon-Ereignis“)werden an den Sender übertragen (s. Tabelle 2.3), hierzu kann auch ein unsicherer Kommunikationskanal benutzt werden. Der Zeitindex wird in diesem Beispiel durch eine einfache Nummerierung ersetzt.

Photon-Ereigniss:	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
APD-Nr.:	3	2	4	2	2	1	2	2	4	3	4	2
Basis:	d	s	d	s	s	s	s	s	d	d	d	s
Bitwert:	0	1	1	1	1	0	1	1	1	0	1	1

und vier Avalanche-Photodioden (APD). Während der Polarisationsmodulator durch einen Zufallsgenerator gesteuert werden muss, ist die indeterministische Wahl der Basis am Empfänger durch den Strahlteiler gegeben. Die Photonen werden durch die nachfolgenden Polarisationsstrahlteiler nach ihrem Bitwert in der jeweiligen Basis selektiert und von den APDs registriert.

Der Empfänger detektiert mit den vier APDs Einzelphotonenereignisse und protokolliert die jeweilige Messbasis und den Bitwert (s. Tabelle 2.2). Die Wahl der Empfängerbasis, also die Zeile „Basis“ der Tabelle 2.2, muss dem Sender mitgeteilt werden. Hierzu reicht ein klassischer Kommunikationskanal. Der Sender vergleicht die empfangene Liste mit der Basiswahl der eigenen Übertragung und schickt dem Empfänger die Zeitindizes, bei welchen die Basiswahl übereingestimmt hat, wieder über einen unsicheren Kanal (s. Tabelle 2.3). Beide kennen nun die Bitwerte, die bei gleicher Basiswahl gesendet und empfangen wurden. Die Bitfolge kann zur Verschlüsselung nach One-Time-Pad benutzt werden.

Zum Abhörversuch eines Quantenschlüsselaustauschs muss eine dritte Partei die Basis jedes übertragenen Photons raten, was bei der Hälfte der Versuche gelingen wird. Das Photon wird dann in der gewählten Basis ohne Veränderung

Tabelle 2.3: Sender erhält vom Empfänger die Basisliste und zugehörige Zeitindizes, nach Vergleich werden die Zeitindizes der übereinstimmenden Basen an den Empfänger übertragen, es kann wieder ein unsicheres Medium benutzt werden. Damit sind sowohl Sender als auch Empfänger im Besitz eines gemeinsamen Quantenschlüssels, der zum Einmalschlüssel-Verfahren benutzt werden kann.

Photon-Ereigniss:	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Basis:	d	s	d	s	s	s	s	s	d	d	d	s
Sender-Basis:	s	s	d	s	d	d	d	d	s	d	s	s
Übereinstimmung:	×	ok	ok	ok	×	×	×	×	×	ok	×	ok
Bitwert:	0	1	1	1	0	1	0	1	1	0	0	1
Q-Schlüssel:		1	1	1						0		1

weitergesendet. Ist die Basis falsch gewählt, so ist das Messergebnis zufällig. Wenn das vom Angreifer in der falschen Basis gemessene und somit veränderte Photon weitergesendet wird und vom Empfänger in der Basis des Senders detektiert wird, dann ist das Resultat wieder zufällig. Wenn der Sender und Empfänger ein Teil der Quantenübertragung vergleichen, so besteht in Anwesenheit eines Angreifers bei jedem Bit eine 25 %-Chance eines Fehlers. Damit kann die Anwesenheit eines Angreifers bestätigt werden.

Weitere Protokolle sind z. B. das von C. Benett im Jahre 1992 vorgeschlagene B92-Protokoll, in welchem nur zwei nicht-orthogonale Zustände genutzt werden [13], oder E91, vorgeschlagen 1991 von A. Eckert [14]. Bei E91 sind zur Kommunikation verschränkte Photonen notwendig, ein Angreifer wird über eine Verletzung der Bellschen Ungleichung bestätigt.

2.4 Halbleiterquantenpunkte als Einzelphotonenemitter

2.4.1 Ansätze zur Erzeugung einzelner Photonen

Wie bereits oben geschildert, wird Einzelphotonenemission durch Antibunchingverhalten der Korrelationsfunktion nachgewiesen (s. Abschnitt 2.2). Damit muss es zwischen zwei Photonenemissionen eine Totzeit geben, was am einfachsten mit elementaren Emittern wie einzelne Atome oder Ionen realisiert werden kann. Einer Photonenemission muss eine Anregung folgen, während dieser Pumpzeit kann ein einzelnes Atom nicht emittieren. In Experimenten mit Emissionskaskaden in Quecksilberatomen und abgeschwächter Emission von Natriumatomen eines Atomstrahls konnte in den siebziger Jahren erstmals die nichtklassische Natur dieser Lichtquellen nachgewiesen werden [7, 15]. Nachteile derartiger SPS waren Quellengröße, die verwendeten Pumpmechanismen und schlechte Quanteneffizienz. Die Entwicklung von Paul-Fallen ermöglichte das Einsperren und Untersuchen einzelner Atome, erhöhte aber den experimentellen Aufwand. Der Nachweis nichtklassischer Lichtemission eines einzelnen Ions gelang Diedrich und Walther im Jahre 1987 [16]. Für Einsperrzeiten von bis zu zehn Minuten musste die Paul-Falle im Ultrahochvakuum (5×10^{-11} mbar) betrieben werden.

Einen anderen Ansatz zur Erzeugung einzelner Photonen wird bei der parametrischen Fluoreszenz verfolgt. Durch nichtlineare Effekte in einem Kristall kann ein Photon unter Energie- und Impulserhaltung in zwei sekundäre Photonen halber Energie umgewandelt werden. Typischerweise wird das eine Photon als ein Trigger zur Ankündigung des Emissionszeitpunktes des anderen Photons benutzt. Diese Eigenschaft kann in vielen Experimenten vorteilhaft ausgenutzt werden. Außerdem ist es auch möglich beide Photonen miteinander zu verschränken, so dass die parametrische Fluoreszenz für Verschränkungsexperimente benutzt wird. Nachteilig ist, dass die Photonen nicht *on demand* erzeugt werden können und sie große spektrale Bandbreite im Bereich zehntel Nanometer aufweisen.

Eine atomartige SPS kann durch Defekte in einem nichtleitenden anorganischen Kristall realisiert werden, wie z. B. Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum in einem Diamanten. Ein derartiger Defekt ist räumlich lokalisiert, kann also als ein nulldimensionales System betrachtet werden. Das System wird optisch angeregt und emittiert ein einzelnes Photon, danach kann eine erneute Anregung stattfinden. Die Elektron- und Loch-Bindungsenergien in der Störstelle sind höher als thermische Anregung bei Raumtemperatur, damit ist eine stabile Einzelphotonenemission bei Raumtemperatur möglich. Erste kommerzielle SPS wurde 2008 vorgestellt und wurde durch optisches Pumpen eines auf einer Faser geklebten Diamanten mit einem Defektzentrum realisiert. Kürzlich wurde auch eine elektrisch betriebene SPS auf der Basis eines Diamant-Halbleiterkristalls vorgestellt, bei welcher ein $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,45 bei Zimmertemperatur gemessen wurde [17].

Noch vor 2008 gab es bereits kommerzielle Quantenkryptographiesysteme, welche allerdings nicht auf SPS sondern auf abgeschwächten Lasern als Einzelphotonenquelle basierten [18]. Wie im Abschnitt 2.2 gezeigt, kann eine Laseremission kein Antibunching aufweisen. Es handelt sich also nicht um eine SPS im eigentlichen Sinn, dennoch kann eine derartige Lichtquelle zur Einzelphotonenemission eingesetzt werden. Durch Abschwächung der Emission kann die Wahrscheinlichkeit, im betrachteten Zeitintervall zwei oder mehr Photonen zu erhalten, massiv reduziert werden. Dabei verschiebt sich der Mittelwert der Verteilung in Abb. 2.2 zu kleineren Werten und der Nachteil derartiger Realisierung der Quantenkommunikation wird offensichtlich: Die meisten Intervalle beinhalten keine Photonen und können zum Austausch eines Quantenschlüssels nicht verwendet werden (s. Abb. 2.6). Der Nachteil wird durch eine sehr einfach zu implementierende Photonenquelle aufgewogen.

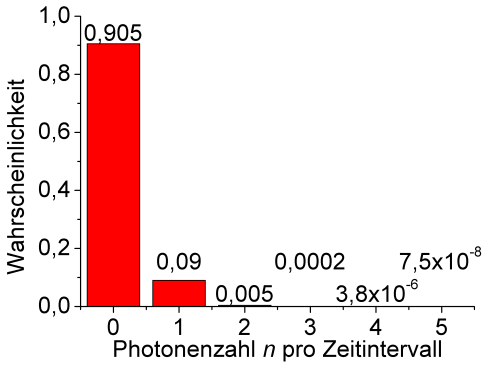


Abbildung 2.6: Wahrscheinlichkeit, n Photonen eines abgeschwächten Lasers innerhalb eines Zeitintervalls zu finden. Der Erwartungswert beträgt $\langle n \rangle = 0{,}1$. Um die Zweiphotonenemission auf unter ein Prozent zu minimieren, wird eine Wahrscheinlichkeit von über 90 Prozent eines Leerintervalls in Kauf genommen.

2.4.2 Niederdimensionale Halbleiterstrukturen

Beim Übergang von makroskopischen zu mikroskopischen Strukturen beobachtet man das Einsetzen quantenmechanischer Effekte. Ist ein Ladungsträger im Potential der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge eingeschlossen, so bildet die Wellenfunktion des Ladungsträgers eine stehende Welle mit diskretem Energieeigenwert aus. Abhängig von der Anzahl der Dimensionen, in denen ein Ladungsträger eingesperrt wird, verändert sich die elektronische Zustandsdichte des Materials:

$$D(E) = \frac{dn}{dE}\,. \tag{2.17}$$

Sie beschreibt die Anzahl n der einnehmbaren Zustände mit der Energie E in einem Energieintervall dE.

In einem dreidimensionalen isotropen Festkörper der Länge L in allen Raumrichtungen gilt für die freien Ladungsträger die Dispersionsrelation

$$E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 \left|\mathbf{k}\right|^2}{2m^*}\,, \tag{2.18}$$

mit der effektiven Masse m^* und dem Wellenvektor $\mathbf{k}$. Aus den Randbedingungen erhält man für den k-Raum (Impulsraum)

$$k_i = \frac{2\pi n_i}{L},\ n \in N,\ i \in \{x, y, z\}\,. \tag{2.19}$$

Die möglichen k-Werte sind diskret und mit Abständen $\frac{2\pi}{L}$ äquidistant im k-Raum verteilt. Um auf die Zustandsdichte zu kommen, berechnet man die Anzahl der möglichen Zustände in einer Kugelschale im k-Raum zwischen k und $k + dk$

$$\rho(k)dk \;=\; \frac{L^3}{(2\pi)^3} 4\pi k^2 dk \;=\; \frac{L^3}{2\pi^2} k^2 dk \tag{2.20}$$

und setzt in diese die Dispersionsrelation 2.18 ein. Zusammen mit der Gleichung (2.17) erhält man:

$$D(E) = \frac{L^3}{2\pi^2} \left(\frac{2m^*}{\hbar^2}\right)^{3/2} \sqrt{E}\,. \tag{2.21}$$

Im Volumenhalbleiter steigt also die Zustandsdichte mit der Wurzel der Energie (s. Abb. 2.7).

Wird die Bewegung der Ladungsträger in einer Dimension eingeschränkt, so spricht man von einem Quantenfilm. Quantenfilme dienen z. B. als aktive Schichten in Halbleiterlaserdioden [19]. Die möglichen k-Werte sind auf eine Ebene L_z eingeschränkt, für die Bestimmung der Zustandsdichte werden die in einem Kreisring zwischen k und $k + dk$ liegende Zustände bestimmt. Analog ergibt sich die Zustandsdichte zu

$$D(E) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2 L_z} \sum_i \Theta(E - E_i)\,, \tag{2.22}$$

mit Θ-Treppenfunktion, falls in der eingeschränkten Dimension mehrere Energiezustände möglich sind. Zwischen den Sprüngen hängt die Zustandsdichte nicht von der Energie ab.

Bei der Einschränkung einer weitere Dimension y bewegen sich die Ladungsträger nur entlang eines Quantendrahts in x-Richtung. Der k-Raum ist eine Gerade mit äquidistant verteilten Wellenvektoren, für die Zustandsdichte gilt nach analoger Rechnung:

$$D(E) = \frac{\sqrt{2m^*}}{\pi\hbar L_y L_z} \sum_i \left(\frac{\Theta(E - E_i)}{(E - E_i)^{1/2}} \right) . \tag{2.23}$$

Die Zustandsdichte ist proportional zu $1/\sqrt{E}$ und weist wie im zweidimensionalen Fall Van-Hove-Singularitäten an den Übergängen zu höheren Energiezuständen in den eingeschränkten Dimensionen auf.

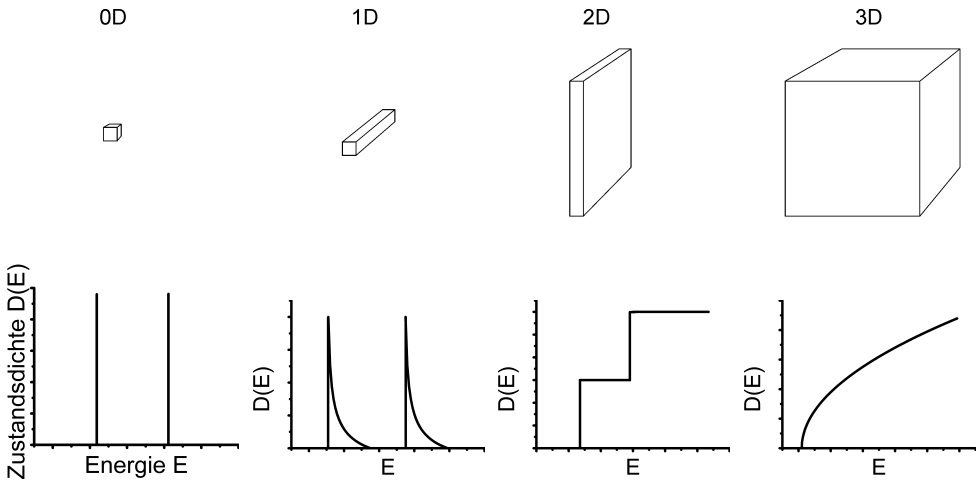


Abbildung 2.7: Elektronische Zustandsdichte eines Festkörpers mit Bewegungsfreiheit der Ladungsträger in 0 bis 3 Dimensionen. Eine Einschränkung in allen Dimensionen, wie z. B. in einem Quantenpunkt, führt zu einer deltaförmigen Zustandsdichte mit atomartigen Energieniveaus. Ist ein Freiheitsgrad nicht eingeschränkt, dann ist die Zustandsdichte eine inverse Wurzelfunktion der Energie. Mit zwei Freiheitsgraden ist sie stufenweise konstant, im dreidimensionalen Festkörper folgt die Zustandsdichte einer Wurzelfunktion.

In einer nulldimensionalen Struktur, realisiert z. B. durch einen Quantenpunkt [20], ist die Bewegung der Ladungsträger in allen Raumrichtungen eingeschränkt. Die Zustandsdichte wird dabei diskret und kann als Folge von Deltafunktionen dargestellt werden. Derartige Strukturen werden hinsichtlich ihrer diskreten Energiezustände auch als „künstliche Atome“ bezeichnet, trotz einer atomaren Größenordnung von ca. 10^4 Atomen. Die erste Herstellung gelang 1986 Reed *et al.* [21] indem in einem GaAs-Quantenfilm quadratische Mesen mit 0,25 μm Kantenlänge geätzt wurden.

Gegenwärtig existieren mehrere etablierte Methoden nulldimensionale Halbleiterstrukturen herzustellen. Neben dem ursprünglichen lithographischen Verfahren mittels Elektronenstrahl oder Rasterkraftmikroskop gibt es die Möglichkeit, eine kolloidale Lösung mit Halbleiter-Quantenpunkte auf einem Substrat verdampfen zu lassen und epitaktisch zu überwachsen. Ein weiteres Verfahren basiert auf Abscheiden von Monolagen einer Halbleiterverbindung auf einem Substrat. Dabei besitzt das zu deponierende Material eine größere Gitterkonstante, erfährt also auf der Substratoberfläche kompressive Verspannung. Die Verspannung wird durch spontane Ausbildung von Inseln abgebaut, man spricht von selbstorganisiertem Wachstum von Quantenpunkten. Bekannte Quantenpunkt-Materialsysteme sind z. B. InGaAs/GaAs, InGaN/GaN, CdSe/ZnSe, InP/GaInP, InAlAs/AlGaAs. Besonders für optoelektronische Bauelemente sind selbstorganisierte epitaktische Quantenpunkte von enormer Bedeutung [22–24].

2.4.3 Elektronische und optische Eigenschaften von Quantenpunkten

Im Rahmen dieser Arbeit wurden in einer Galliumarsenid-Matrix eingebetteten InGaAs-Quantenpunkte als Lichtquelle für einzelne Photonen verwendet. Galliumarsenid (GaAs) und Indiumarsenid (InAs) sind binäre III-V-Halbleiter. Sie kristallisieren in Zinkblendestruktur. Die beiden Atome aus der dritten und der fünften Hauptgruppe des Periodensystems bilden jeweils ein kubisch-flächenzentriertes Gitter, welche ineinander gestellt und um ein Viertel der Raumdiagonale versetzt wurden. Neben Silizium lassen sich diese Verbindungshalbleiter epitaktisch mit sehr hoher Reinheit und Präzision herstellen. Weiterer Vorteil ist die Möglichkeit der Herstellung von ternären und quaternären Legierungen wie InGaAs, AlGaAs oder InGaAsP. Damit sind gitterangepasste Halbleiterheterostrukturen und Anpassung der Bandlücke durch Materialzusammensetzung möglich. Der weltweit erste cw[1]-betriebene Halbleiterlaser war eine Doppelheterostruktur im AlGaAs-Materialsystem.

Als Bandstruktur eines Halbleiters bezeichnet man die Dispersionsrelation $E(\mathbf{k})$, also den Zusammenhang zwischen Energie E und Impuls $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$ eines Zustandes. Die Abbildung 2.8 zeigt die Bandstruktur der ternären Verbindung $Al_xGa_{1-x}As$ in Abhängigkeit von der Aluminiumkonzentration x. Die x-Achse repräsentiert im reziproken Raum unterschiedliche im Kristall ausgezeichnete Impulsrichtungen, dabei ist der Γ-Punkt das Zentrum mit einem Impuls $\mathbf{p} = 0$, X- und L-Punkt liegen am Rand der Brillouin-Zone mit Impuls in Richtung $\langle 100 \rangle$ und $\langle 111 \rangle$. Die Bandlücke E_g ist der Abstand zwischen Valenzband-Oberkante und Leitungsband-Unterkante. Liegt das Minimum des Leitungsbandes (LB) und das Maximum des Valenzbandes (VB) nicht übereinander, dann handelt es sich um einen indirekten Halbleiter (siehe Bandstruktur von AlAs in Abb. 2.8). Bei der strahlenden Rekombination eines Elektrons aus dem LB ins VB muss wegen der Impulserhaltung ein zusätzlicher Impuls

[1] engl. *continuous waveform*: Der Laser wird im Dauerstrich betrieben.

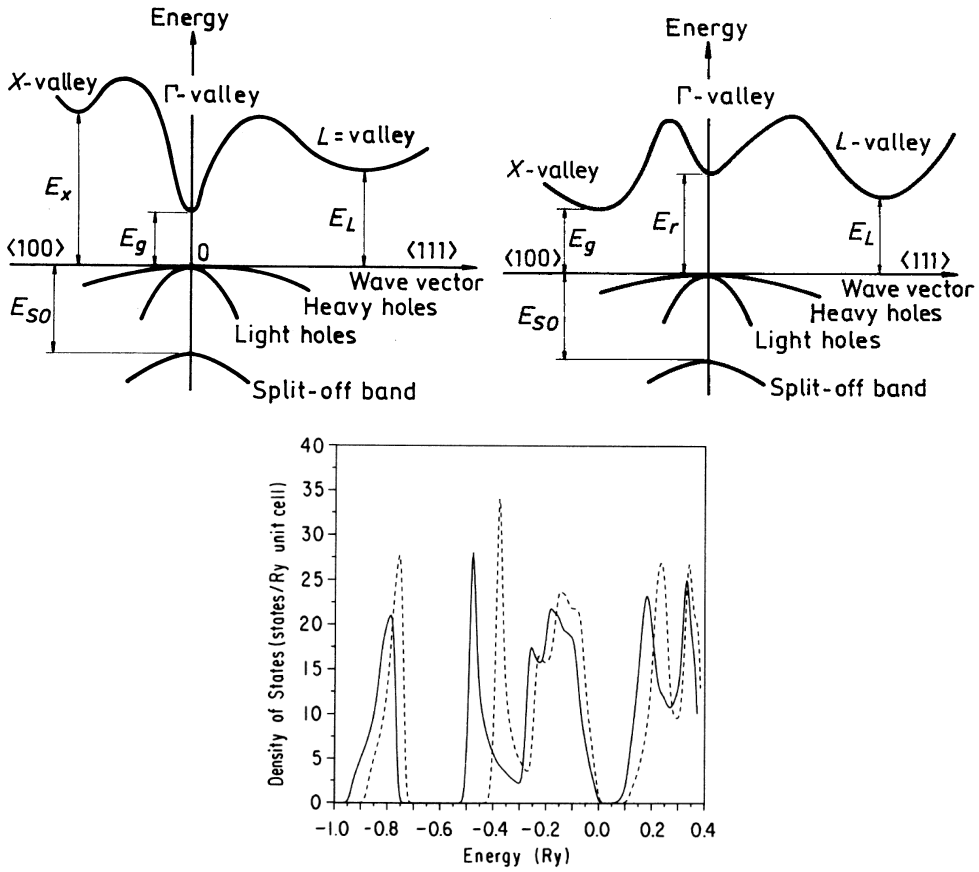


Abbildung 2.8: Bandstruktur der ternären Verbindung $Al_xGa_{1-x}As$. Links: die Konzentration von Aluminium beträgt $x \leq 0{,}41 - 0{,}45$. Rechts: $x \geq 0{,}45$. Unten: Zustandsdichte von GaAs (durchgezogen) und AlAs (gestrichelt). Die x-Achse ist in Energieeinheiten Ry (1Ry≈13,6 eV) dargestellt. Bei T=0 K sind die Zustände mit negativer Energie voll besetzt und mit positiver Energie leer. Entnommen aus [25, 26].

an das Gitter abgegeben werden. Daher ist der Übergang weniger wahrscheinlich und wird eher über andere, nicht strahlende Rekombinationsmechanismen stattfinden. Liegen das LB-Minimum und das VB-Maximum übereinander, dann muss kein Impuls aus dem Gitter beigesteuert werden und der Übergang ist wahrscheinlicher (siehe GaAs in Abb. 2.8).

Die in den Berechnungen der Zustandsdichte (Gleichungen (2.21) bis (2.23)) verwendete effektive Masse m^* kann aus der Bandstruktur bestimmt werden. Die Dispersionsrelation lässt sich stets in der Nähe eines Maximums des Valenzbandes bei $k = 0$ durch eine Parabel annähern, so dass die Gleichung (2.18) in guter Näherung erfüllt ist. Leitet man diese zwei mal nach dem Wellenvektor k ab, so ergibt sich der Zusammenhang zwischen der Krümmung der

Dispersionsrelation und der effektiven Masse:

$$m^* = \hbar^2 \left[\frac{d^2 E(k)}{dk^2} \right]^{-1} . \tag{2.24}$$

Die Spin-Bahn-Wechselwirkung verursacht am Γ-Punkt eine Energieverschiebung der zweifach entarteten Zustände mit Gesamtdrehimpuls $j = 1/2$, $j_z = \pm 1/2$ gegenüber den vierfach entarteten Zuständen $j = 3/2$, $j_z = \pm 3/2$, $\pm 1/2$. Die Zustände mit $j = 1/2$ bilden das sogenannte Split-off-Band und sind um $E_{SO} \approx 0.35$ eV separiert [27].

Die Entartung der $j = 3/2$-Zustände am Γ-Punkt wird für Impulse $\mathbf{k} \neq 0$ aufgehoben, es bilden sich zwei Dispersionszweige, welche als HH- und LH-Band bezeichnet werden[2]. Die $j_z = \pm 3/2$-Zustände bilden das HH-Band, ihre Dispersionsrelation hat eine schwächere Krümmung und damit eine größere effektive Masse. Entsprechend bilden die $j_z = \pm 1/2$ mit stärkerer Krümmung das LH-Band (s. Abb. 2.8). Die Ladungsträger im HH-Band dominieren die Eigenschaften der Valenzbandkante, denn größere effektive Masse bedeutet eine höhere Zustandsdichte (s. Gleichung (2.21)).

Bei der einfachen Betrachtung eines periodischen Volumens erhielt man für die Zustandsdichte eines freien Elektronengases $D(E) \sim \sqrt{E}$ (s. Abb. 2.7 ganz rechts). Dabei wurde die starke Näherung eines Elektrons in einem konstanten, periodischen Potential der Länge L angenommen. In einem realen Festkörper ist die Verteilung der Zustände im k-Raum komplizierter: Die Elektronen beeinflussen sich gegenseitig und das Potential ist durch Atomrümpfe vorgegeben, deren Gleichgewichtslage wiederum durch Elektronen oder allgemeine Gitterschwingungen verändert wird. In der unteren Teilabbildung 2.8 sind die gemessenen Zustandsdichten von GaAs und AlAs dargestellt. Bandlücken, Gitterkonstanten und effektive Massen der in dieser Arbeit verwendeten III-V-Halbleiter sind in der Tabelle 2.4 zu finden.

Wie bereits erläutert, ist für die Erzeugung einzelner Photonen ein Emitter notwendig, der nach Emission stets eine gewisse Zeit für eine weitere Anregung benötigt. Diese Eigenschaft ist in einem einzelnen Atom immer gegeben, während in einem Halbleiter spezielle Strukturen hergestellt werden müssen, die ähnliche Merkmale aufweisen. Im Allgemeinen kann durch lokale Einschränkung der Ladungsträgerwellenfunktionen eine atomartige Zustandsstruktur mit diskreten Energieniveaus erzeugt werden. In einem Halbleiter wird eine derartige lokale Einschränkung durch Einbringen von Materialien mit geringerer Bandlücke realisiert. Durch Intrabandübergänge, also Übergänge innerhalb des Valenz- oder Leitungsbandes, nehmen die Ladungsträger energetisch tiefere Zustände im Material mit geringerer Bandlücke an. Diese Relaxation ist sehr schnell und innerhalb von 0,1 ps bis 10 ps wird die überschüssige Anregung an das Gitter abgegeben. Ist das Material mit geringeren Bandlücke auf kleinen Raum lokalisiert, dann sind die Ladungsträger in einem Potentialtopf mit

[2] HH = heavy hole, Schwerloch-Band; LH = light hole, Leichtloch-Band

Tabelle 2.4: Parameter der in dieser Arbeit verwendeten III-V-Halbleiter. Aufgeführt sind: Energie der Bandlücke E_g für Raum- und Kryotemperatur, Gitterkonstanten a und effektive Massen von Elektronen im Leitungsband m_c^* und Löchern im Valenzband m_{lh}^*, m_{hh}^*. Die effektiven Massen sind in Einheiten der Elektronenmasse m_0 angegeben. Die Indizes d und i stehen für direkte oder indirekte Bandlücke.

	GaAs	AlAs	InAs
E_g (eV) 300 K	1,424 d	2,16 i	0,354 d
E_g (eV) 4 K	1,519 d	2,229 i	0,415 d
a (Å)	5,653	5,661	6,058
m_c^* (m_0)	0,063	0,19	0,023
m_{lh}^* (m_0)	0,082	0,18	0,026
m_{hh}^* (m_0)	0,51	0,51	0,41

diskreten Energieniveaus gefangen. Im GaAs-Halbleitersystem wird hierzu die Lokalisation von InAs in Quantenpunkten während eines Stranski-Krastanov-Wachstums auf GaAs-Substrat benutzt. Es handelt sich um ein selbstorganisiertes Wachstum, dessen Ursache in unterschiedlichen Gitterkonstanten von Substrat und Quantenpunktmaterial liegt (s. Abschnitt 4.3).

Die Bandlücke von InAs liegt bei 0,354 eV, die Zustände an der Valenz- und Leitungsbandkante können aber wegen fehlender Zustandsdichte nicht besetzt werden. Die Lage der Energieniveaus im Quantenpunkt wird durch seine chemische Zusammensetzung, Größe, Form und Verspannung bestimmt [28]. Anschaulich kann die Geometrieabhängigkeit der Energieniveaus aus der Lösung der Schrödingergleichung für einen harmonischen Oszillator hergeleitet werden: Je breiter das Einschlusspotential, desto mehr Energiezustände sind vorhanden und desto dichter rücken sie zusammen. Bei InAs-Quantenpunkten in einer GaAs-Matrix handelt es sich um eine Heterostruktur vom Typ I. Die VB-Oberkante und LB-Unterkante von InAs liegen innerhalb der Bandlücke von GaAs, so dass sowohl Löcher als auch Elektronen eingeschlossen werden. In der Abbildung 2.9 ist die elektronische Struktur eines Typ I Quantenpunktes bei einfacher Besetzung mit einem Elektron oder einem Loch (ohne Wechselwirkungstherme) schematisch dargestellt.

Die Quantisierungseffekte der Energieniveaus beginnen erst ab einem Einschlusspotential in der Größenordnung der effektiven de Broglie-Wellenlänge

$$\lambda^* = h/\sqrt{2m^*(E - E_{Bandkante})} \tag{2.25}$$

der Elektronen bzw. Löcher. Man spricht hier vom starken Confinement der Ladungsträger im Quantenpunkt. Die de Broglie-Wellenlänge hängt nicht nur von der effektiven Masse m^*, sondern auch von der Energie der Ladungsträger ab. Die räumliche Ausdehnung wirkt auf die Lage der Energieniveaus innerhalb der InAs-Struktur [29]. Es ist also möglich durch bestimmte Wachstumsbedingungen die Größe, und somit die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte

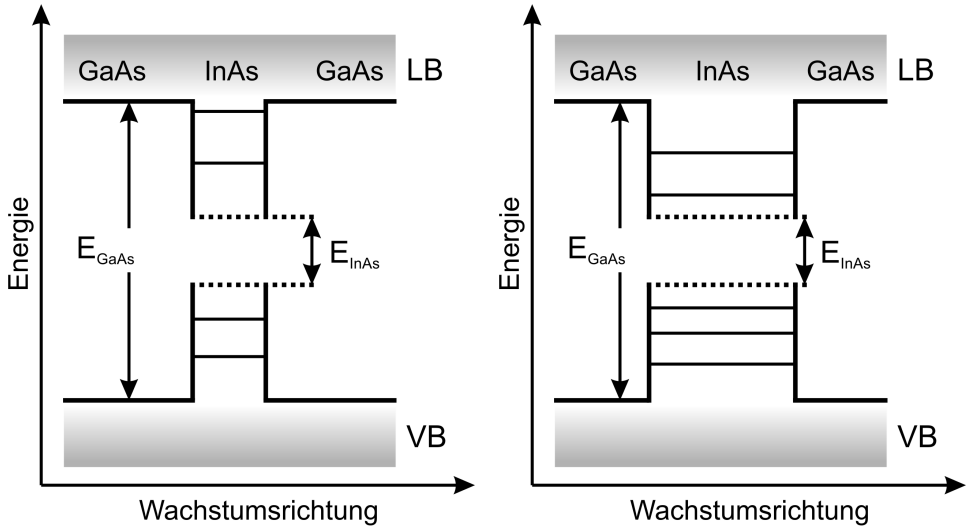


Abbildung 2.9: Banddiagramm zweier InAs-Quantenpunkte unterschiedlicher Größe, die in einer GaAs-Matrix eingebettet sind. Bei einer Ausdehnung der Quantenpunkte in der Größenordnung der effektiven de Broglie-Wellenlänge spricht man von starkem Confinement. Die Zustände im Valenz- und Leitungsband sind dann nicht mehr quasikontinuierlich, sondern diskret. Größenvariation der Quantenpunkte innerhalb der Bedingung des starken Einschlusses führt zu Änderung der Energieabstände untereinander und zu Bandkanten. Jedes Energieniveau ist zweifach Spin-entartet.

einzustellen. Die niedrigsten Niveaus im QP werden als Elektron- und Loch-Grundzustand, die darüber liegenden als angeregte Zustände bezeichnet. Jeder diskrete Energiezustand kann mit zwei Ladungsträgern unterschiedlichen Spins besetzt werden.

Befinden sich mehrere Ladungsträger im Quantenpunkt, so überlappen ihre Wellenfunktionen und die Coulomb-Wechselwirkung muss berücksichtigt werden. Besonders das starke Confinement in einem QP führt zu einer deutlich höheren Coulomb-Wechselwirkung. Ein Exziton, also ein Elektron-Loch-Paar (X), hat im Volumenmaterial GaAs eine Bindungsenergie von 3,4 meV [27]. In einem Quantenpunkt ist sie deutlich höher: Numerische Berechnungen ergaben 11 meV bis 26 meV für Quantenpunkte mit 20,4 nm bis 11,2 nm Basislänge der Quantenpunkt-Pyramide [30]. Durch sukzessives Auffüllen der Elektron- und Loch-Grundzustände sind weitere Komplexe möglich. Ein zusätzliches Elektron oder Loch bildet ein positives bzw. negatives Trion (X+ bzw. X-) mit insgesamt drei Ladungsträgern im Quantenpunkt. Eine vollständige Besetzung mit jeweils zwei Elektronen und Löchern heißt Biexziton (XX). Die Besetzung der Grundzustände und das dazugehörige Energieschema sind schematisch in den Abbildungen 2.10 und 2.11 dargestellt.

Mehrere in einem Quantenpunktpotential eingesperrte Ladungsträger bilden ein quantenmechanisches Mehrteilchensystem. Es müssen somit weitere Beiträ-

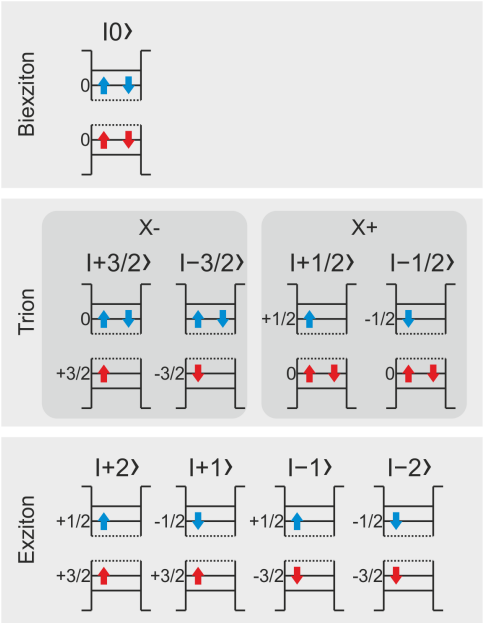


Abbildung 2.10: Besetzung des Elektron- und Loch-Grundzustandes mit mindestens einem Ladungsträger. Die Konfiguration mit jeweils einem Ladungsträger wird als Exziton bezeichnet. Kommt ein weiterer positiver oder negativer Ladungsträger hinzu, so wird der Komplex positives oder negatives Trion ($X+$ bzw. $X-$) genannt. Eine vollständige Besetzung bezeichnet man als Biexziton. Die Komplexe zerfallen strahlend oder nichtstrahlend unter Phononenanregung und können schematisch in einem Energiediagramm zusammengefasst werden (s. Abb. 2.11). Aufgrund der Spin-Entartung der Zustände existieren mehrere Möglichkeiten der Besetzung bei gleicher Anzahl der Ladungsträger [31]. Sie unterscheiden sich energetisch und in ihrem Emissionsverhalten. Aufgrund der Drehimpulserhaltung kann bei einer Rekombination mit Gesamtdrehimpulsänderung um ± 2 kein Photon emittiert werden. Im Gegensatz dazu ist bei ± 1 eine strahlende Rekombination möglich.

ge der Coulomb-Wechselwirkung berücksichtigt werden. Neben den klassischen, elektrostatischen Kräften treten zwei zusätzliche Terme auf: Zum Einen bewegen sich die Ladungsträger nicht wie bei Hartree–Fock-Näherung als Teilchen in einem externen und zeitlich konstanten Feld. Es muss berücksichtigt werden, dass jedes Teilchen seine Umgebung stets verändert und sich die Rückwirkung der Umgebung aufgrund geringer Abstände quasi instantan aufbaut. Es handelt sich um einen Vielteilcheneffekt der Coulomb-Wechselwirkung. Diese Energiekorrektur wird als Korrelationsenergie bezeichnet. Zum Anderen verlangt die Quantenmechanik eine antisymmetrische Wellenfunktion aufgrund des fermionischen Charakters der Elektronen und der Löcher. In Folge der geforderten Antisymmetrie entstehen Austauschterme, welche zu einer Energieverschiebung führen. Dieser Beitrag wird auch als Austauschwechselwirkung bezeichnet und führt zusätzlich zu einer Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes.

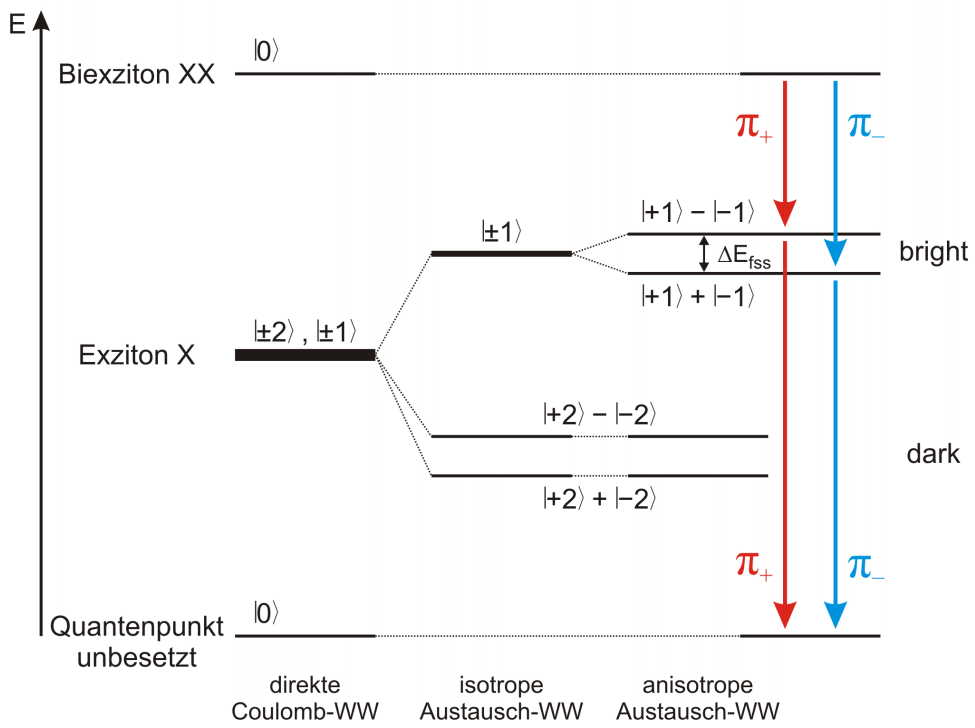


Abbildung 2.11: Energiediagramm eines exzitonischen und eines biexzitonischen Ladungsträgerkomplexes. Dargestellt ist die Entwicklung der Feinstruktur in Abhängigkeit von den betrachteten Wechselwirkungen. Farblich gestalteten Pfeile markieren den optisch aktiven Zerfallsprozess des Biexzitons und Exzitons mit einer Gesamtdrehimpulsänderung von ± 1. Zusätzliche, quantenmechanisch bedingte Austauschterme führen zu einer Feinstrukturaufspaltung ΔE_{fss} und zur Superposition der Exziton-Niveaus. Die Rekombination der superponierten Zustände erfolgt unter Emission eines linear polarisierten Photons (π_+ oder π_-) mit den Polarisationsachsen senkrecht oder parallel zur Anisotropieachse.

Wie bereits geschildert, dominieren die Schwerlochzustände mit Gesamtdrehimpuls $j^h = 3/2$ aufgrund der deutlich höheren effektiven Masse und damit verbundener Zustandsdichte den Loch-Grundzustand in einem Quantenpunkt. Ein aus einem Elektron mit Gesamtdrehimpuls $j^e = 1/2$ und einem Schwerloch aufgebauter Exziton hat also eine der vier möglichen Projektionen des Gesamtdrehimpulses $j = j^e + j^h$ in z-Richtung $j_z = -2, -1, +1, +2$. Ohne Austauscheffekte sind die vier Zustände entartet. Die isotrope Austauschwechselwirkung führt zur Aufspaltung zwischen den optisch aktiven Zuständen $|\pm 1\rangle$ und inaktiven $|\pm 2\rangle$ und zusätzlich zu einer Feinstrukturaufspaltung und Durchmischung der $|\pm 2\rangle$-Zustände. Optisch aktive Exziton-Zustände, auch bright-Zustände genannt, besitzen einen Gesamtdrehimpuls von 1 und ihr strahlender Zerfall zu einem zirkular polarisierten Photon genügt der Drehimpulserhaltung. Für die beiden Zustände $|\pm 2\rangle$ gilt das nicht. Die Beobachtung ist nur mit externen

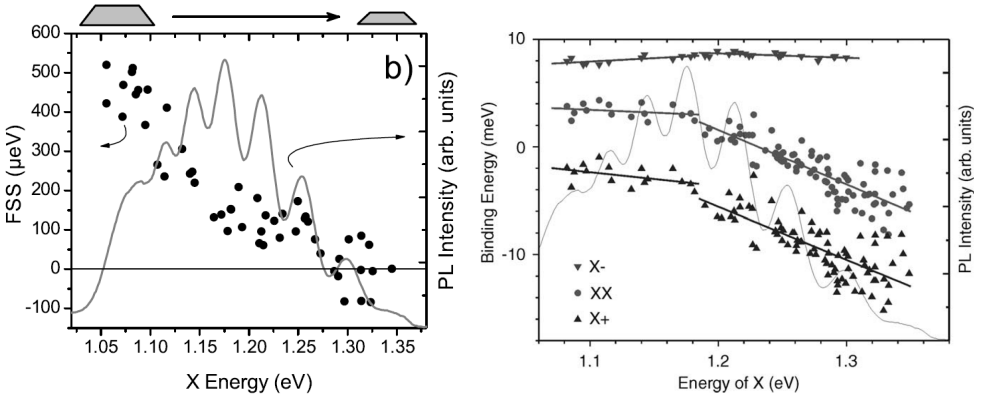


Abbildung 2.12: Links: Messwerte der Feinstrukturaufspaltung der Exziton-Emissionslinie in Abhängigkeit von der Rekombinationsenergie des Exzitons und damit von der Größe des Quantenpunktes. Die Größe des Quantenpunktes beeinflusst sowohl die Energie des Exzitons als auch die Verspannung des Quantenpunktes. Das verspannungsinduzierte piezoelektrische Feld bedingt die Austauschwechselwirkung, was zu einer variablen Feinstrukturaufspaltung führt. Rechts: Messung der Bindungsenergie des Biexzitons und der positiv und negativ geladenen Trionenzustände in analoger Abhängigkeit von der Rekombinationsenergie des Exzitons. Der von der Größe des Quantenpunktes abhängige Überlapp der Elektronen- und Löcher-Wellenfunktionen kann sowohl zu bindenden als auch zu antibindenden Ladungsträgerkonfigurationen führen. Entnommen aus [33, 34].

magnetischen Feldern, die eine Mischung mit bright-Zuständen verursachen, oder durch 2-Photonen-Prozesse möglich [32]. In der Abbildung 2.11 ist die schematische Entwicklung der Feinstruktur in Abhängigkeit von den betrachteten Wechselwirkungen wiedergegeben.

Die Formasymmetrie, Verspannung und piezoelektrische Felder in einem Quantenpunkt werden durch Gitterfehlanpassung und Kompositionsfluktuationen innerhalb eines QPs hervorgerufen [35]. Dies führt zu einer Anisotropie des Quantenpunktpotentials. Damit reduziert sich die Symmetrie zu C_{2v} und anisotrope Anteile der Austauschwechselwirkung müssen berücksichtigt werden. Wenn ein Quantenpunkt keine Rotationssymmetrie in der Wachstumsebene aufweist, so führt das zu einer Aufspaltung um ΔE_{fss} und Durchmischung der bright-Zustände. Die bright-Zustände sind nunmehr eine Superposition der reinen Zustände $|\pm 1\rangle$, $|+1\rangle - |-1\rangle$ und $|+1\rangle + |-1\rangle$. Ein Zerfall derartig superponierter Zustände führt zur Photonenemission mit linearer Polarisation π_+ oder π_- (s. Abb. 2.11). Die Polarisationsachsen stehen dabei senkrecht oder parallel zur Anisotropieachse. Bei der Rekombination eines Biexzitons zu einem Exziton gilt die Betrachtung analog, nur weist nicht der Endzustand, sondern der zerfallende Anfangszustand keine Aufspaltung auf. In Lumineszenzmessungen wird deshalb die Feinstrukturaufspaltung sowohl an der Exziton- als auch an der Biexziton-Linie beobachtet.

Die Stärke der Aufspaltung hängt von der Größe des Quantenpunktes ab [33]. Aufgrund der Gitterfehlanpassung zwischen AlAs und GaAs ist die Schubverformung größer für größere Quantenpunkte, was zu einem stärkeren piezoelektrischen Feld und größerer Feinstrukturaufspaltung führt (s. Abb. 2.12). Eine weitere Besonderheit ist die Existenz von negativen Bindungsenergien für sowohl Trionen als auch Biexzitonen. Es ist eine Folge des starken Confinements, die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger ist schwächer als das Einschlusspotential eines Quantenpunktes, so dass antibindende Ladungsträgerkonfigurationen beobachtet werden können [34].

Bei der Trion-Emissionslinie wird hingegen keine Feinstrukturaufspaltung beobachtet. Ein aus drei Fermionen aufgebauter Trion weist im Grundzustand einen halbzahligen Spin auf, bei einem negativ geladenen Trion ($X-$) ist der Gesamtspin $|\pm 3/2\rangle$, bei einem positiv geladenen Trion ($X+$) $|\pm 1/2\rangle$. Derartige Zustände mit halbzahligem Spin sind nach Kramers Theorem immer mindestens zweifach entartet. Damit sind sowohl der positive als auch der negative Trionenzustand entartet und haben keine Feinstrukturaufspaltung. Auch Quantenpunktzustände, die nach Rekombination eines negativ oder positiv geladenen Trions übrig bleiben, sind halbzahlig. Die zwei Möglichkeiten der Spin-Ausrichtung eines Elektrons oder eines Loches sind also auch entartet. Lumineszenzmessungen an den zirkular polarisierten Trion-Linien zeigen deshalb keine Feinstruktur.

2.5 Wechselwirkung mit einem Mikroresonator

Der Einsatz von Quantenpunkten als Einzelphotonenemitter stößt an mehreren Stellen auf physikalisch bedingte Limitierungen. Die stets steigende Informationsmenge fordert höhere Bandbreite, die mittlere Exziton-Zerfallszeit von ca. 1 ns [36] begrenzt die Taktrate der Datenübertragung jedoch auf 1 GHz. Auch die räumlich isotrope Emissionswahrscheinlichkeit eines Quantenpunktes führt zum Verlust der meisten Photonen. Eingebettet in eine Halbleitermatrix tritt an den Grenzflächen zu Luft Totalreflexion auf, was zusätzlich die Auskoppeleffizienz verringert. In dieser Arbeit werden mehrere Ansätze zur Verbesserung der Taktrate und des Emissionsprofils vorgestellt.

1946 entdeckte Purcell [37] die Abhängigkeit der spontanen Emission eines Emitters von seiner Umgebung. Er stellte fest, dass bei Kopplung eines atomaren Emitters an einen Resonator die Wahrscheinlichkeit einer spontanen Emission erhöht wird. Die Übergangsrate eines Anfangszustandes $|i\rangle$ in einen Endzustand $|f\rangle$ unter Einfluss einer Störung wird mit Hilfe der quantenmechanischen Störungstheorie beschrieben. Nach Fermis Goldener Regel gilt für die Übergangsrate $\lambda_{i\to f}$:

$$\lambda_{i\to f} = \frac{2\pi}{\hbar}\rho(\omega)\left|\langle f|\,\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}\left(\mathbf{r}\right)|i\rangle\right|^2 . \tag{2.26}$$

Dabei ist $\rho(\omega)$ die optische Zustandsdichte bei der Übergangsfrequenz $\omega =$

$(E_i - E_f)/\hbar$ und $\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})$ ist der Wechselwirkungsoperator des Emitters mit Dipolmoment $\mathbf{d}$ mit dem elektromagnetischen Feld $\mathbf{E}(\mathbf{r})$. Die Übergangsrate hängt also ab von der Kopplung des Lichtfeldes an den Emitter und von der Anzahl der möglichen optischen Moden an der Stelle der Übergangsfrequenz ω, in welche beim Übergang $i \to a$ ein Photon emittiert werden kann.

Im Vakuum gilt für die optische Zustandsdichte in einem Volumen V:

$$\rho_{vac}(\omega) = \frac{\omega^2 V}{\pi^2 c^3} \,. \tag{2.27}$$

Entscheidend ist nun, dass die optische Zustandsdichte $\rho(\omega)$ in einem Resonator im Vergleich zum Vakuum stark modifiziert wird. Im Resonanzfall $\omega = \omega_0$ gilt:

$$\rho_{cav}(\omega) = \frac{2Q}{\pi\omega} \,. \tag{2.28}$$

Dabei ist Q die Güte des Resonators. Sie beschreibt die Effektivität des Einschlusses der elektromagnetischen Strahlung, je größer der Q-Faktor eines Resonators, desto länger ist ein Photon darin gefangen. Sind die Frequenz ω_c und die Linienbreite $\delta\omega_c$ einer Resonatormode bekannt, so bestimmt man die Güte des Resonators aus

$$Q = \frac{\omega_c}{\delta\omega_c} \,. \tag{2.29}$$

Hat ein Resonator für die k-te Mode den Verlustfaktor β_k, so gibt er auf dieser Mode, in der die Energie W_k gespeichert ist, im Zeitintervall dt die Energie dW_k ab:

$$dW_k = -\beta_k W_k dt \,. \tag{2.30}$$

Nach Abschalten der Energiezufuhr wird daher die Strahlungsenergie in dieser Resonatormode exponentiell abnehmen. Aus Gleichung (2.30) folgt:

$$W_k(t) = W_k(0) e^{-\beta_k t} \,. \tag{2.31}$$

Man definiert die Resonatorgüte Q_k für die k-te Resonatormode als ein Verhältnis der gespeicherten Energie zum pro Schwingungsperiode $1/\nu$ auftretenden Energieverlust:

$$Q_k = -2\pi\nu \frac{W_k}{dW_k/dt} \,. \tag{2.32}$$

Aus Gleichungen (2.30) und (2.32) erhält man

$$Q_k = 2\pi\nu/\beta_k = 2\pi\nu\tau_k \,. \tag{2.33}$$

Durch die Beziehung $\tau_k = 1/\beta_k$ kann man eine mittlere Verweilzeit der Photonen im Resonator definieren. In einem Fabry-Perot-artigen Resonator sind die Verluste über Reflektivitäten der verwendeten Spiegel, Absorption und Streuung definiert.

Für den Übergangsmatrixelement $|\langle f| \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) |i\rangle|^2$ betrachtet man die Kopplung des Vakuumfeldes mit Nullpunkt-Energie $E_{vac} = \sqrt{\left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}\right)}$ mit dem

Dipolmoment $\mathbf{d}$. Die Kopplung ist bis auf Faktor 3 sowohl im freien Raum als auch im Resonator gleich:

$$|\langle f|\,\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}\,(\mathbf{r})\,|i\rangle|^2_{cav} = \frac{\mathbf{d}^2\hbar\omega}{2\epsilon_0 V} = 3\,|\langle f|\,\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}\,(\mathbf{r})\,|i\rangle|^2_{vac}\,. \tag{2.34}$$

Der Faktor 3 kommt dadurch zustande, dass im freien Raum die Orientierungen des Dipols und aller möglichen Moden des elektromagnetischen Feldes berücksichtigt werden müssen, denn aufgrund der Ausrichtung koppelt im Mittel nur jede dritte Mode an den Dipol. In einem Resonator kann der Dipol bezüglich der Resonatormoden entsprechend ausgerichtet werden.

Der Purcell-Faktor beschreibt die Verstärkung der spontanen Emission und wird als Quotient der Übergangsraten eines freien und an einen Resonator gekoppelten Emitters berechnet. Unter Verwendung von Gleichungen (2.26) bis (2.28) und Gleichung (2.34) erhält man für den Purcell-Faktor:

$$F_p = \frac{\lambda_{cav}}{\lambda_{vac}} = \frac{3}{4\pi^2}\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3\frac{Q}{V}\,. \tag{2.35}$$

Die Verstärkung steigt also mit der Güte des Resonators Q und ist umgekehrt proportional zum Modenvolumen V. Ein zu hoher Q-Faktor führt zum unerwünschten Regime der starken Kopplung. Hierbei wird die spontane Emission reversibel und die Energie wird zwischen dem angeregten Zustand eines Quantenpunktes und dem elektromagnetischen Feld in der Resonatormode ausgetauscht. Das Gebilde kann als ein neues Quasiteilchen - das Polariton - aufgefasst werden. Unerwünscht hinsichtlich eines Betriebs als Einzelphotonenquelle ist die Rabi-Aufspaltung im Resonanzfall der Mode und des Emitters. Hierbei bleibt die Verstärkung der spontanen Emission aus und die nun Polariton-artigen Emissionslinien der Resonatormode und des Emitters zeigen ein Anticrossing [38]. Auch die Vakuum-Rabi-Oszillation der Besetzung ist für eine konstant hohe Rate der Photonenemission unerwünscht. Es ist jedoch denkbar, dass die dabei entstehende Verschränkung der Emitter- und Resonatorzustände für Quantencomputer ausgenutzt werden kann [39].

Der Kehrwert der Übergangsrate entspricht der mittleren Zerfallszeit τ eines Exzitons

$$\tau_{X,cav} = \frac{1}{\lambda_{cav}}\,. \tag{2.36}$$

Der Purcell-Effekt ermöglicht damit eine Überwindung der physikalischen Begrenzung der Photonenrate aufgrund der mittleren Zerfallszeit eines Exzitons in einem Quantenpunkt von $\tau_{X,free} \approx 1\,\mathrm{ns}$ [36]. Mit den technologisch zugänglichen Parametern eines Resonators wie dem Modenvolumen und dem Q-Faktor kann die Zerfallszeit gezielt verringert werden.

Gleichzeitig verbessert sich die Quanteneffizienz des strahlenden Exziton-Zerfallsprozesses und die Abstrahlcharakteristik der emittierten Photonen. Aufgrund der erhöhten Wahrscheinlichkeit für den erwünschten Zerfallskanal

sind die nicht nutzbaren Verlustkanäle, wie z. B. nichtstrahlende Rekombination, weniger wahrscheinlich, was die Quanteneffizienz verbessert. Zum Anderen weisen gerade die Resonatormoden, in welche der Emitter bevorzugt emittiert, geringe Divergenz und günstige Anisotropie der Abstrahlcharakteristik auf. So kann z. B. eine TEM_{00}-Mode eines rotationssymmetrischen Resonators (Gauß-Mode) unter minimalen Verlusten in eine Glasfaser eingekoppelt werden. Ein an derartige Mode koppelnder Emitter strahlt nicht mehr isotrop, sondern bevorzugt in diese Mode.

2.6 Einsatz von Mikrolinsen in elektrisch betriebenen Einzelphotonenemittern

Neben dem in dieser Arbeit weiterverfolgten resonatorbasierten Ansatz kann die Auskoppeleffizienz durch eine rein geometrische Modifikation des Bauelements weiter verbessert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das erste Konzept eines Bauelements mit Kathodolumineszenz(CL)-Mikrolinsenstrukturierung entwickelt. Zusammen mit der ebenfalls realisierten Positionierungskontrolle sind Bauelemente mit hoher Auskoppeleffizienz möglich. Die technologischen Lösungsansätze sind im Abschnitt 3.4 zu finden. Nachfolgend soll nur kurz der theoretische Hintergrund skizziert werden.

Zunächst sollte der Begriff der Auskoppeleffizienz präzisiert werden. Mehrere mögliche Definitionen stehen zur Verfügung. Die intuitive Bestimmung wäre das Verhältnis der spontanen Emission eingefangen mit einer Sammeloptik im Raumwinkel W_{SO} zur totalen Emission in den gesamten Raumwinkel $W_{4\pi}$:

$$\eta = \frac{W_{SO}}{W_{4\pi}} \,. \tag{2.37}$$

Für den einfachsten Fall eines Emitters eingebettet in eine lateral unendlich ausgedehnte Halbleitermatrix mit einer Luft-Halbleiter-Grenzschicht berechnet man die Auskoppeleffizienz bei $W_{SO} = 2\,\alpha_{tot}$ zu $\eta = 1/2\,n^2$ (s. Abb. 2.13 links).

Für einen InGaAs-Quantenpunkt mit Emissionswellenlänge von $950\,nm$ in einer GaAs-Umgebung erhält man mit dem Brechungsindex $n_{GaAs}(\lambda = 950\,nm)$ = 3,54 eine Auskoppeleffizienz von 0,04. Sammelt man das Licht mit einer Optik ein, so liegen die typischen Effizienzen bei weniger als 1 %.

Befindet sich der Emitter in einem Resonator, so kann die Effizienz des Emissionsvorgangs in die bevorzugte Mode untersucht werden. Das Verhältnis der spontanen Emission in diese Mode zur Gesamtemission ist ein wichtiger Parameter η_{mode} bei Mikrolasern. Im Fall von Einzelphotonenemittern muss die Einkopplung in eine Sammeloptik zusätzlich berücksichtigt werden. Die Verluste in der Mode z. B. durch Streuung, und auch Reflexionen an der Optik führen zu einem weiteren Parameter η_c.

Der Einsatz von Mikrolinsen auf Auskoppeloberflächen erhöht deutlich die Auskoppeleffizienz ohne Verwendung komplizierter Techniken wie Wellenführung mit photonischen Kristallen oder Mikroresonatoren, vielmehr kann der

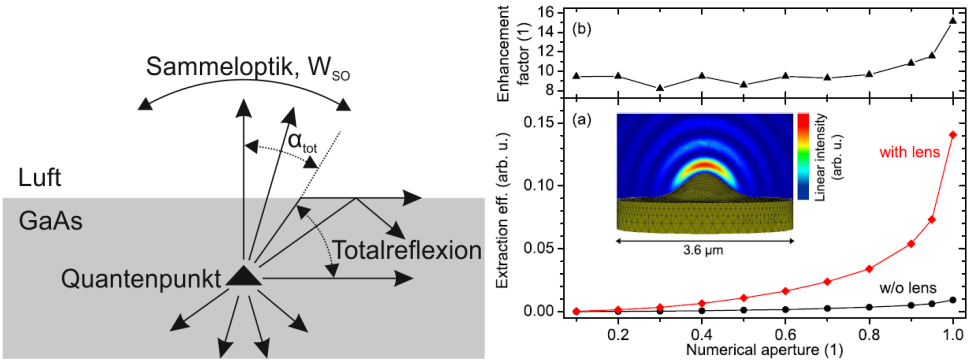


Abbildung 2.13: Abbildung links: Unendlich ausgedehnter Halbleiter mit einer Luft/GaAs-Grenzschicht und einem isotrop emittierenden Quantenpunkt. Bei einer isotropen Emissionsverteilung und einem Brechungsindex $n_{GaAs}(\lambda = 950\,nm) = 3{,}54$ können allein aufgrund des Gesetzes von Snellius über 95 % des Lichtes das Halbleitermaterial nicht verlassen. Zusätzliche Verluste beim Einkoppeln in eine Sammeloptik ergeben Auskoppeleffizienzen von unter einem Prozent. Abbildung rechts: Finite-Elemente-Simulation der Emissionsverteilung einer punktförmigen Quelle mit und ohne einer darüberliegenden Mikrolinse durchgeführt von Gschrey *et al.* [40]. Dargestellt sind Auskoppeleffizienz und Faktor der Verbesserung in Abhängigkeit von der numerischen Apertur der Sammeloptik. Die schwarze Linie mit Punkten zeigt die Auskoppeleffizienz im Fall einer ebenen Fläche, in rot ist die Verbesserung durch eine Mikrolinse dargestellt. In der Simulation ergab sich eine Verbesserung von mindestens Faktor 8 (schwarze Linie mit Dreiecken).

Ansatz damit kombiniert werden. Weiterhin ist eine Verwendung unabhängig von der Wellenlänge oder dem Materialsystem möglich. Ein weiterer Vorteil ist die höhere Auflösung des Elektronenstrahls gegenüber optischen Lithographieverfahren.

Im Rahmen dieser Arbeit entstanden die ersten Lösungsansätze und Teststrukturen zum Implementieren von Mikrolinsen in elektrisch betriebenen Einzelphotonenemittern (s. Abschnitt 3.4). An dieser Stelle folgt eine kurze Beschreibung der in der Gruppe von Prof. Reitzenstein entwickelten Technologie der *In-situ*-Elektronenstrahllithographie [41].

Zunächst befindet sich die Probe in einem Tieftemperatur-Kathodolumineszenzaufbau. Dabei sind die spektralen Eigenschaften der Quantenpunkte und ihre laterale Position auf der Oberfläche im Messaufbau feststellbar. Für eine anschließende *In-situ*-Strukturierung der Oberfläche ist die Probe mit einem ca. 200 nm dicken PMMA-Lack (Polymethylmethacrylat) benetzt. Der Lack beeinflusst aufgrund seiner geringen Dicke nicht die Kathodolumineszenzmessung der Probe. Die Parameter des Elektronenstrahls, die Expositionszeit und Lackdicke sind so gewählt, dass nach dem Abtasten der Oberfläche zur Feststellung von Position und Eigenschaften von Quantenpunkten der Entwickler den exponierten Lack vollständig entfernen würde. Erst weitere Belichtung mit

höherer Dosis verändert die Lackentwicklung und macht den Lack zunehmend unlöslich. Diese Eigenschaft macht eine anschließende *In-situ*-Belichtung zur Strukturierung des Lacks möglich. Die entwickelte Probe mit z. B. einer Mikrolinse aus PMMA als Ätzmaske wird mittels ICP RIE (Inductively Coupled Plasma Reactive-ion etching) trockenchemisch geätzt. Die Analyse erster Messergebnisse ergab eine Verbesserung der Auskoppeleffizienz η um einen Faktor von 6,6 [41]. Es wurde die mittlere Referenzintensität der Exziton-Linien von 25 Quantenpunkten ermittelt, die vergraben unterhalb nicht strukturierter Oberfläche lagen. Diese wurde mit der Intensität der Exziton-Linien von zwei Quantenpunkten verglichen, die nach erfolgreicher Strukturierung unter gaußförmigen Linsen lagen. Um gleiche Anregungsbedingungen zu schaffen, wurden die Intensitätswerte im Sättigungsbereich der Exziton-Linien aufgenommen. Dabei kam eine Sammeloptik mit einer numerischen Apertur (NA) von 0,8 zum Einsatz. Eine Finite-Elemente-Simulation zeigte für eine perfekte gaußförmige Linse und Sammeloptik mit NA von 0,8 eine Verbesserung um Faktor 9,6 [40].

3 Design und Modellierung elektrisch betriebener Bauelemente

Der Einsatz von Quantenpunkten als Einzelphotonenemitter in einem elektrisch betriebenen Bauelement bedarf einer entsprechend angepassten Halbleiterumgebung. Für Photolumineszenzbetrieb ist nur eine aktive Schicht aus Quantenpunkten niedriger Nukleationsdichte notwendig, welche in einem nicht dotierten Substrat eingebettet sind. Für elektrische Befüllung muss die Leitfähigkeit des Halbleiters derart gestaltet werden, dass der Stromfluss nur durch die aktive Zone stattfinden kann und im Strompfad möglichst wenige, im Idealfall ein einzelner, Quantenpunkte vorhanden sind. Ein Bauelement mit derartigen Eigenschaften kann nur aus einem gemeinsamen Einsatz von Epitaxie und Halbleiter-Prozesstechnologie entstehen. In diesem Kapitel sollen Lösungsansätze besprochen werden, die bereits etabliert, im Rahmen der Arbeit eingeführt, erprobt oder entwickelt wurden. Es wurden mehrere Ansätze verfolgt, der große Durchbruch gelang jedoch mit dem Einsatz einer neuen Positionierungsmethode für Quantenpunkte, welche in der Arbeitsgruppe entwickelt [42, 43] und in dieser Arbeit erstmalig in einem Bauelement erfolgreich eingesetzt werden konnte [44]. Es soll zunächst die verwendete Grundstruktur - die Mesa - besprochen werden. Auf ihr bauen die höher entwickelten Designs auf, auf die in separaten Unterkapiteln eingegangen wird. Anschließend werden die bereits ausgearbeiteten weiterführenden Entwicklungen vorgestellt, welche noch nicht vollständig abgeschlossen sind.

3.1 Grundstruktur

In einem typischen epitaktischen Aufbau eines Bauelements befindet sich die aktive Zone mit Quantenpunkten aus InAs im intrinsischen Bereich einer pin-Struktur, welche auf GaAs-Substrat gewachsen wurde. Die Schichten oberhalb des intrinsischen Bereichs sind p-dotiert, und die Schichten unterhalb n-dotiert. Beim selbstorganisierten Wachstum von Quantenpunkten im Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus müssen sehr niedrige Dichten von ca. 10^8 pro Quadratzentimeter erreicht werden, damit nur wenige Quantenpunkte Licht emittieren und sich spektral nicht überlappen. Ist ein Quantenpunkt spektral separierbar, dann kann durch einen Bandpassfilter die Emission anderer Quantenpunkte unterdrückt und Einzelphotonenemission aus einem einzelnen Quantenpunkt erreicht werden.

Als Grundstruktur wurde eine flache zylindrische Mesenform mit Basisdurchmesser von ca. 40 μm ausgewählt (s. Abb. 3.1). Innerhalb der Mesa befinden sich durchschnittlich immer noch über 1200 Quantenpunkte, was zusätzliche Se-

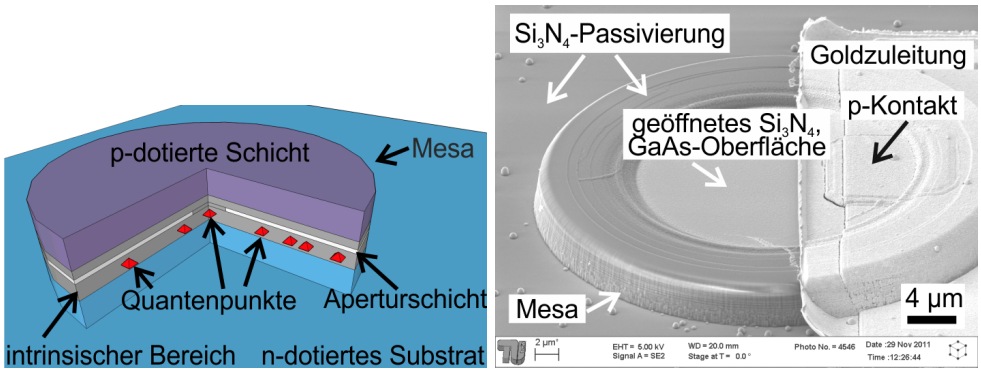


Abbildung 3.1: Grundstruktur eines elektrisch kontaktierten Einzelphotonenemitters. Links: schematische Abbildung einer Mesa. Dargestellt sind: n-dotiertes Substrat in blau, intrinsischer Bereich in grau mit Quantenpunkten, eine teilweise oxidierte AlGaAs-Schicht als Apertur und eine p-dotierte Schicht in violett (s. zum Vergleich Abb. 3.2). Rechts: Elektronenmikroskop-Aufnahme einer fertig prozessierten Struktur. Mesa und das Substrat sind abgedeckt mit einer Si_3N_4-Schicht. Zur Lichtauskopplung und elektrischen Kontaktierung wurde sie auf der Oberfläche der Mesa kreisförmig entfernt. Weiterhin sichtbar ist die Stromzuleitung zur p-dotierten GaAs-Oberfläche.

lektion notwendig macht. Dazu fügt man in den intrinsischen Bereich oberhalb der aktiven Zone eine AlGaAs-Schicht ein mit sehr hohem Aluminiumanteil von 98 % bis 100 %. Während der Prozessierung wird sie in einer Wasserdampfatmosphäre unter kontrollierten Bedingungen selektiv oxidiert und formt dabei eine strombegrenzende Apertur. Aufgrund der guten lateralen Homogenität des Oxidationsprozesses kann die gewünschte Apertur durch Abfolge von Mesen mit immer größer werdendem Durchmesser, z. B. von 34 μm auf 43 μm in 1 μm Schritten, auch ohne genaue Kontrolle der Oxidation realisiert werden. Dadurch reduziert man den Durchmesser der stromdurchflossenen Fläche von 40 μm auf unter 1 μm (s. Abb. 3.2). Nachteilig ist die Reduktion der Ausbeute: Erreicht man eine Oxidationstiefe von z. B. 20 μm, dann sind Mesen mit einem Durchmesser zwischen 34 μm und 40 μm nicht mehr leitfähig. Die Mesen mit einem Durchmesser von 41 μm, 42 μm und 43 μm haben jedoch deutlich weniger Quantenpunkte unterhalb der Apertur, durchschnittlich 0,79, 3,14 und 7. Neben der elektrischen Selektion weniger Quantenpunkte ist eine optische Modenführung aufgrund eines geringeren Brechungsindex des Oxids ein weiterer Vorteil der Oxidapertur, der insbesondere in einem resonatorbasierten Design ausgenutzt werden kann.

Nach der Oxidation verringert sich das Volumen des neu entstandenen Aluminiumoxids verglichen mit nichtoxidiertem AlGaAs isotrop um 7 %, was zu Verspannungen der Diodenstruktur führt. Es müssen zusätzliche Entspannungsschichten mit Gradienten der Aluminiumkonzentration eingebaut werden, damit die Struktur nicht reißt. Sie wird empfindlich gegen starke Temperaturanstiege

auf über 150 °C und gegen äußere mechanische Einwirkungen, wie z. B. ultraschallbasierte Bondingverfahren, so dass die obere Kontaktfläche sich möglichst weit von der verspannten Struktur befinden sollte. Doch die Verspannung kann auch gezielt ausgenutzt werden, wie im Abschnitt 3.3 weiter unten beschrieben wird.

Die Goldzuleitungen müssen gegenüber dem Substrat isoliert werden, um Kurzschluss zu vermeiden. Das ist durch eine Si_3N_4-Schicht realisiert, die nach dem trockenchemischen Ätzen der Mesa in einem PECVD-Verfahren[1] aufgebracht wird. Schließlich werden die Zuleitungen und Kontaktflächen aus Gold aufgedampft. Eine schematische Zeichnung des fertigen Bauelements ist in Abbildung 3.2 dargestellt.

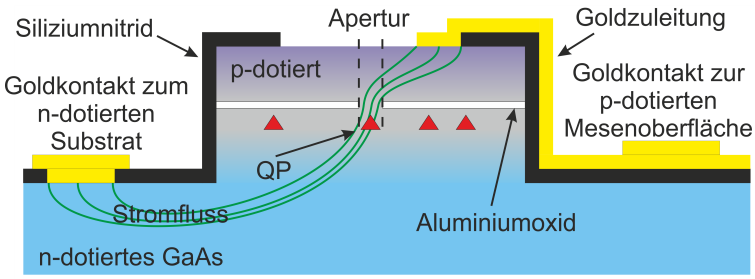


Abbildung 3.2: Schematische Schnittzeichnung eines fertigen Bauelements. Die elektrische Zuleitung zum p-dotierten Bereich ist vom n-dotierten Substrat durch eine Si_3N_4-Isolationsschicht getrennt. Die oxidierte aluminiumhaltige Aperturschicht schränkt den Strompfad auf einen Durchmesser unterhalb eines Mikrometers ein. Bei geeigneter Quantenpunktdichte kann so ein einzelner Quantenpunkt elektrisch angeregt werden. Durch Hinzufügen eines Bragg-Spiegels im n-dotierten Bereich (hier nicht abgebildet) kann die Auskoppeleffizienz zur Oberfläche signifikant verbessert werden. Für den Aufbau eines Mikroresonators wird ein weiterer DBR-Spiegel im p-dotierten Bereich eingefügt (s. Abschnitt 3.2).

Das Design ist angelehnt an eine VCSEL-Struktur[2]. Allerdings sind die Zuleitungen und Kontaktflächen größer und entsprechen nicht einer GSG-Anordnung[3], damit der Chip problemlos auf einem Träger aufgebracht und mittels Bonddraht kontaktiert werden kann. Neben der schon erwähnten einfachen Integration von epitaktisch gewachsenen Spiegeln kann das Design zur schnelleren Prototypen-Entwicklung mit Rückseitenkontakt implementiert werden. Auch die Anzahl von aluminiumhaltigen Schichten, ihre Komposition und Position können verändert werden, was verspannungsinduziertes Quanten-

[1] plasma-enhanced chemical vapour deposition
[2] Vertical Cavity Surface Emitting Laser
[3] Ground Signal Ground, parallele Führung dreier Zuleitungen, zweier Masse- und einer eingeschlossener Signalleitung. Streifenleitung erlaubt eine definierte Impedanz auf der gesamten Leitungslänge. Sind die im Signalweg vorhandenen Impedanzen angepasst, so verschwinden die an Impedanzsprüngen auftretenden Signalreflexionen. Weiterhin strahlen sie nur sehr wenig an eingekoppelter Energie ab, haben also geringe Dämpfung.

punktwachstum ermöglicht oder zur adiabatischen Expansion der Lichtmode ausgenutzt werden kann. Die durchgeführten Simulationen zur adiabatischen Expansion werden im Abschnitt 3.5 vorgestellt. Schließlich bietet die Oberfläche einer Mesa die Möglichkeit zur Nanostrukturierung mit Mikrolinsen (s. Abschnitt 3.4) oder Lichtführung durch photonische Kristalle [45].

Erste Resultate unter Verwendung des Grunddesigns wurden im Jahr 2006 publiziert [46]. Das Bauelement zeigte Elektrolumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes bei 10 K. Bei einer Anregung von 870 pA emittierte eine einzelne Linie in einem Spektralbereich von 500 nm, bei höheren Strömen wurden die Biexziton- und die Trion-Linie sichtbar.

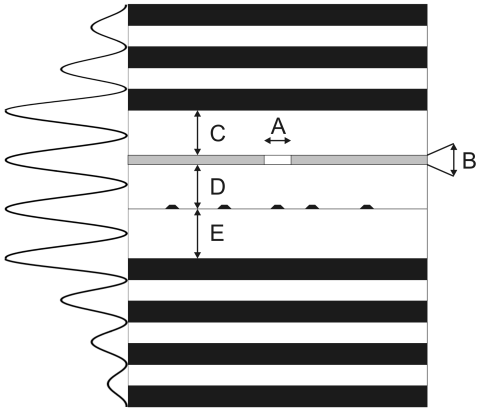
3.2 Resonatorbasiertes Design

Um die Auskoppeleffizienz und Rekombinationsdynamik eines Quantenpunktes zu verbessern, kann dieser in einen Mikroresonator eingesetzt werden. Eine derartige Struktur wird auch als Resonant Cavity LED (RCLED) bezeichnet. Wie im Abschnitt 2.5 beschrieben, koppelt der Quantenpunkt an die Resonatormoden, was zur Verringerung der Exziton-Lebensdauer und erhöhten Wahrscheinlichkeit einer Emission in diese Moden führt. Die Kopplungsstärke wird über den Gütefaktor Q des Resonators bestimmt, also über das Verhältnis ausgekoppelter zur gespeicherten Energie. Der Gütefaktor kann über Reflektivitäten der Resonatorspiegel eingestellt werden.

Zur Einbettung des Quantenpunktes in einen Resonator wird die epitaktische Struktur um zwei Bragg-Spiegel erweitert. Die auf diese Weise hinzukommenden Parameter wie Länge des Resonators, Reflektivitäten der Spiegel, Lage der Quantenpunkte und der Oxidapertur innerhalb des Resonators und die Dicke der Aperturschicht wurden in einer Simulation auf optimale Konfiguration hin untersucht. Die weiterführenden Informationen sind in der Diplomarbeit von M. C. Münnix zu finden. Hier soll nur die Methode und Ergebnisse vorgestellt werden [47].

In der Simulation wurde die Methode der Eigenmoden-Expansion verwendet, eine detaillierte Beschreibung ist in [48] zu finden. Es wird eine Eigenschaft von Feldern ausgenutzt, dass beliebige elektromagnetische Felder in einer Schicht sich als Superposition von Eigenmoden dieser Schicht darstellen lassen. Die Feldverteilung in einer Struktur ist aus Eigenmoden einzelner Schichten aufgebaut, wobei an den Grenzflächen Kontinuitätsbedingungen gelten müssen. Als Randbedingungen werden Perfectly Matched Layers (PML) bevorzugt [49], weil sie die Umgebung als unendlich approximieren und am Übergang zu PML so gut wie keine Reflektionen stattfinden. Als numerische Simulationssoftware wurde das freie Programm CAMFR (Cavity Modelling Framework) verwendet [50].

Die simulierte Struktur ist ein $3/2\lambda$-Resonator, das stehende Feld weist also drei Wellenbäuche und zwei Knoten innerhalb des Resonators auf. Die InAs-Quantenpunkte und die Aperturschicht liegen jeweils im Maximum des elektromagnetischen Feldes, der obere und untere Bragg-Spiegel bestehen aus 4



Simulationsparameter, optimal:

A	Durchmesser der Apertur	1 µm
B	Dicke der Apertur	100 nm
C	Abstand oberer DBR – Apertur	60 nm
D	Abstand Apertur – QD	78 nm
E	Abstand QD – unterer DBR	119 nm

Abbildung 3.3: Darstellung der simulierten RCLED mit 4 und 12 Spiegelpaaren oben und unten, die einen $3/2\lambda$-Resonator einschließen. A bis E bezeichnen die variierten Simulationsparameter. Verglichen mit typischen Mikroresonatoren von Laserstrukturen ist die Anzahl der Paare geringer, um nicht in den Bereich der starken Kopplung zu gelangen. In dem Resonator befindet sich eine aktive Zone und oxidierte Aperturschicht. Beide liegen jeweils im Maximum des elektromagnetischen Feldes. Zur besseren Übersicht sind nicht alle Spiegelpaare dargestellt und der Maßstab ist nicht eingehalten. Für optimal gewählte Simulationsparameter ergab die Simulation eine Erhöhung des Purcell-Faktors um Faktor 1,9.

und 12 Spiegelpaaren $GaAs$ und $Al_{0,9}Ga_{0,1}As$. In der Abbildung 3.3 sind die variierten Parameter und die optimalen Werte angegeben, die einen Purcell-Faktor von 1,9 ergeben würden.

Der realisierte Resonator wies einen Gütefaktor von $Q = 130$ auf mit einer Zentralwellenlänge von 960 nm. Der Quantenpunkt zeigte sehr gute Ergebnisse unter elektrischer Anregung [51]. Dabei konnte ein gepulstes Regime bis zu einer Taktfrequenz von 1 GHz erreicht werden. Die spektral saubere Emission einer einzigen Linie in einem Spektralbereich von 750 nm bis 1050 nm wurde mit 1 GHz-Pulsen angeregt und in einem HBT-Aufbau untersucht. Der Aufbau und die durchgeführten Messungen sind in Abschnitten 5.2 und 6.1 beschrieben. Die zeitliche Auflösung des Aufbaus von 0,6 ns limitierte die Autokorrelationsmessung. Ein gemessener $g^{(2)}$-Wert von 0,25 ergab jedoch nach Entfaltung des Beitrags des Messaufbaus eine saubere Einzelphotonenemission von $g^{(2)} = 0$.

Weitere Erforschung des Einflusses eines Resonators auf die Emissionseigenschaften wurden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt. Es wurden drei Strukturen mit 5/12, 7/13 und 9/13 oberen und unteren Spiegelpaaren hergestellt. Die aktive Zone blieb identisch mit der zuvor untersuchten 4/12-Struktur. Das Design wies eine Resonatormode bei 965 nm auf und die Linienbreite betrug 6 nm, 4 nm und 2,5 nm für den jeweiligen Resonator. Daraus ergeben sich nach Gleichung (2.29) Gütefaktoren von 161, 241 und 386. Die Ergebnisse werden im Abschnitt 6.2 vorgestellt.

3.3 Vorpositionierte Quantenpunkte

Für die zukünftige Verbreitung von Quantenkryptographiesystemen und deren preiswerten Einsatz in möglichst vielen Bereichen der täglichen Kommunikation werden Raumtemperatur-taugliche Bauelemente mit hoher Übertragungsrate gebraucht. Vergleicht man die Entwicklung mit integrierten Schaltkreisen, so ist deren beispielloser Höhenflug zusätzlich auf niedrige Stückkosten zurückzuführen, die aufgrund von Miniaturisierung und hoher Ausbeute immer weiter fallen konnten. Um die Quantenkryptographie massentauglich zu machen, bedarf es also ähnlicher Preisreduktion. GaAs-Halbleitersysteme profitieren von der Silizium-Technologie, lithographische Fertigungsverfahren sind direkt übertragbar und stellen aktuell keine Hürde dar. Vielmehr ist es die Ausbeute, die prinzipbedingt nicht verbessert werden kann, denn die im Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus gewachsenen Quantenpunkte nukleieren zufällig auf der gesamten Probenoberfläche (s. Abschnitt 4.3). Die bereits gezeigte Notwendigkeit der Anregung eines einzelnen Quantenpunktes macht also jedes Bauelement zu einem Zufallstreffer. Die Vorpositionierung verspricht die Lösung des Problems.

3.3.1 Modellierung des Verspannungsfeldes zur Anordnung von Quantenpunkten

Die Idee einer lateral selbstorganisierten Anordnung entspringt einer Beobachtung, dass das Quantenpunktwachstum von der Verspannung der darunterliegenden Oberfläche abhängig ist [20]. Erste Studien mit in GaAs geätzten Gräben zeigten bevorzugte Nukleation von Quantenpunkten entlang geätzter Strukturen, die von einer Pufferschicht zur Reduktion von Wachstumsfehlern überdeckt wurden [52]. Weitere Entwicklung mündete in einer nanolithographischen Oberflächenstrukturierung, welche auch in dieser Arbeit eingesetzt wird. Die nunmehr einige zehn Nanometer großen Löcher erzeugen auf der Oberfläche der sie abdeckenden Schicht Verspannungsanomalien, die als Keime bei der Quantenpunktnukleation fungieren.

Mehrere Ansätze zum deterministischen Platzieren von Quantenpunkten auf einer Substratoberfläche werden derzeit weltweit verfolgt. Typischerweise strukturiert man die Oberfläche mit Nanolöchern direkt mit einer Ionenfeinstrahlanlage (Focused Ion Beam, FIB) [53] oder indirekt mit der Elektronenstrahl-Lithographie. Bei dem indirekten Lithographieverfahren muss anschließend eine nasschemische Ätzung [54] bzw. ein chemisches Trockenätzverfahren wie Plasmaätzen (Reactive Ion Etching, RIE) [55] eingesetzt werden. Nach dem Abscheiden einer GaAs-Pufferschicht von einigen Nanometern wächst man eine Schicht aus selbstorganisierten InAs-Quantenpunkten, die bevorzugt oberhalb der geätzten Löcher nukleieren. Diese Verfahren zur Oberflächenstrukturierung sind nur begrenzt serientauglich. Die eingeschränkte Skalierbarkeit und die Komplexität der verwendeten Technik liegen abseits der technologisch etablierten UV-Lithographie. Die Nanometer-genaue Strukturierung erfolgt

typischerweise seriell und nicht parallel wie bei photolithographischen Verfahren. Weiterhin führt die prinzipbedingte Zerstörung der Wachstumsoberfläche zu Defekten und Versetzungen während des anschließenden Wachstums von Quantenpunkten. Die vorhandene Pufferschicht schützt nur unzureichend, sie kann nicht zu dick gewählt werden, weil sonst der Positionierungseffekt deutlich abnimmt. Die Wachstumsstörungen sind unerwünscht, sie können alternative Strompfade bereitstellen, die mit dem Quantenpunkt konkurrieren und seine Quanteneffizienz senken. Sie können sich auch aufladen, fluktuierende Ladungsverteilungen in unmittelbarer Nähe zum Quantenpunkt führen zur Verbreiterung der QP-Emissionslinien und weiteren Reduzierung der Quanteneffizienz aufgrund des quantum-confined Stark-Effekts und Dephasierung der kohärenten Emission. Diese Effekte, in Summe auch als spektrale Diffusion bezeichnet, haben eine Reduktion des Purcell-Effekts zur Folge [56]. Ein weiterer Ansatz kam aktuell hinzu: Die Quantenpunkte nukleieren auf der Spitze eines Nanodrahtes [57]. Die Strukturierung des Substrats ist aber auch hier nur mit aufwendigen nanolithographischen Verfahren realisiert.

Kürzlich gelang unserer Arbeitsgruppe die Entwicklung eines neuartigen Positionierungsverfahrens, welches keinen der oben genannten Nachteile hat, und sogar prinzipbedingt eine Stromapertur zur Einschränkung des Strompfades auf den platzierten Quantenpunkt aufweist [42]. Analog zu anderen Ansätzen benutzt man eine Verspannungsanomalie, die jedoch nichtinvasiv erzeugt wird und keiner Nanostrukturierung bedarf. Hierzu erzeugt man zunächst eine Schichtstruktur mit einer aluminiumhaltigen Schicht, die später oxidiert werden soll. Zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz kann darunter ein DBR-Spiegel platziert werden. Mit einem herkömmlichen UV-Lithographieschritt und anschließender Trockenätzung werden Mesen hergestellt. Ausführliche Erläuterungen zugehöriger Technologieschritte sind im Abschnitt 4.4.2 zu finden. Nach der selektiven Oxidation der aluminiumhaltigen Schicht verändert sich ihre chemische Zusammensetzung und Struktur und ihr Volumen schrumpft um ca. 7 %. Auf der GaAs-Oberfläche, die die aluminiumhaltige Schicht bedeckt, bildet sich ein Verspannungsfeld aus. Seine Form und Stärke hängen von der Höhe der GaAs-Deckschicht und der Ausdehnung des nicht oxidierten Bereichs ab (s. Abb. 3.4).

Die Abbildung 3.4 zeigt eine von A. Schliwa durchgeführte Simulation der lateralen Oberflächenverspannung einer 100 nm dicken GaAs-Deckschicht in Abhängigkeit von der Ausdehnung der nicht oxidierten viereckigen AlGaAs-Apertur [42]. Die Aperturschicht ist aus drei Unterschichten aufgebaut: Eine 40 nm dicke AlAs-Schicht liegt zwischen zwei 40 nm dicken $Al_{0,90}Ga_{0,10}As$-Schichten. Die rechteckige Form einer Apertur ergibt sich aus der Anisotropie des Oxidationsprozesses von AlGaAs. Die Oxidationsgeschwindigkeit in [100]-Richtung ist höher als in [110]-Richtung. Wie in der Mikroskopaufnahme in Abb. 3.4 rechts sichtbar, führt diese Anisotropie zu einer rautenartigen Oxidationsfront im späteren Verlauf der Oxidation. In der Simulation wurde zur Vereinfachung der Berechnung eine rechteckige Apertur angenommen.

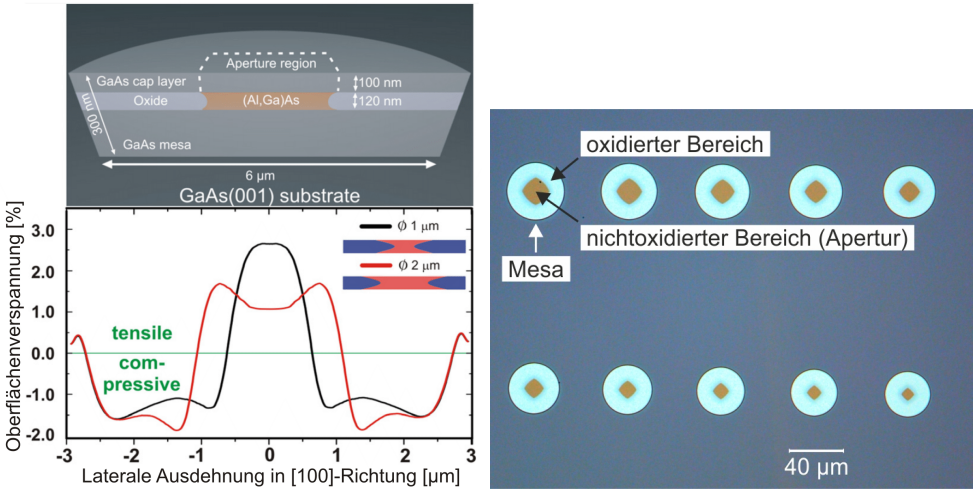


Abbildung 3.4: Ergebnisse der Simulation der Verspannung einer Mesaoberfläche hervorgerufen durch eine vergrabene und teilweise oxidierte AlGaAs-Schicht in Abhängigkeit vom Aperturdurchmesser [42]. Links oben und unten sind die simulierte Struktur und das Resultat der Simulation dargestellt. Die Berechnungen zeigen, dass die Oberfläche im Aperturbereich tensile Verspannung aufweist. Damit ergibt sich lokal eine geringere Gitterfehlanpassung der Oberfläche zum Quantenpunktmaterial InAs. Beim Nukleationsprozess von Quantenpunkten werden die Stellen mit geringster Fehlanpassung bevorzugt. Dieses Verhalten kann zur Positionskontrolle ausgenutzt werden. Zu beachten ist, dass das Verspannungsprofil von der Größe der Apertur abhängt. Ist die Apertur kleiner als 1 μm, dann bildet sich ein einzelnes Maximum und damit tendenziell ein einzelner Quantenpunkt im Zentrum der Mesa. Die Annahme einer rechteckigen Apertur basiert auf der typischerweise beobachteten Form einer Oxidationsfront. Eine exemplarische Testoxidation ist in der rechten Abbildung dargestellt. Die Mikroskopaufnahme zeigt zehn Mesen mit steigendem Durchmesser von 34 μm bis 43 μm. Die nichtoxidierte Apertur erscheint als eine orangene Raute. Die Anisotropie des Oxidationsprozesses ist auf die kristallrichtungsabhängige Oxidationsgeschwindigkeit zurückzuführen.

Die Volumenreduktion der oxidierten aluminiumhaltigen Schicht führt abhängig von der lateralen Position zu einer tensilen oder kompressiven Verspannung der Oberfläche. Dadurch verändern sich die Abstände zwischen den Atomen um wenige Prozent. Da eine Gitterfehlanpassung von 3 % bis 7 % im InGaAs/GaAs-System die Quantenpunktformation verursacht, ist eine Gitterverspannung von wenigen Prozent durch eine darunterliegende Apertur von signifikanter Bedeutung für die Quantenpunktnukleation. Bei einer geeigneten Wahl der Aperturgröße, wie z. B. 1 μm in der vorliegenden Simulation, kann das Verspannungsfeld zu einem einzelnen Maximum oberhalb der Apertur geformt werden. Der tensile Charakter entspricht der Fehlanpassung von InAs auf GaAs und führt zur bevorzugten Nukleation von Quantenpunkten an dieser Stelle. Im Bereich der kompressiven Verspannung wird die Quantenpunktformation

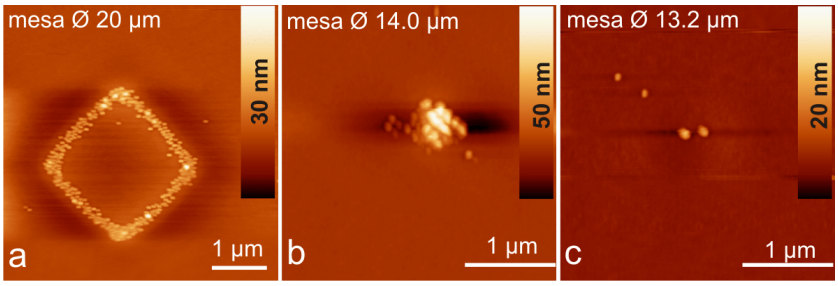


Abbildung 3.5: Rasterkraftmikroskop-Aufnahmen von Quantenpunkten gewachsen auf drei Mesen mit unterschiedlich tief oxidierten Aperturen. Aufgenommen ist die jeweilige Region der Apertur. Die Apertur selbst ist nicht sichtbar. Übereinstimmend mit den Simulationsergebnissen aus Abb. 3.4 nukleieren die Quantenpunkte bei einer ca. 2 μm großen Apertur (a) über dem Aperturrand als eine Raute. Bei einer kleineren Apertur (b) mit einem Durchmesser kleiner als 1 μm bildet sich ein Verspannungsplateau mit einem Quantenpunktcluster. Über einer Apertur mit weniger als 0,5 μm Durchmesser (c) entsteht ein Verspannungsmaximum mit ca. 300 nm Ausdehnung, welches bei der vorliegenden Probe mit zwei Quantenpunkte besetzt wurde. Diese erstmalig in [42] publizierten Ergebnisse zeigen das Potential des Effekts zur Positionskontrolle selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte.

aufgrund höherer Gitterfehlanpassung gehemmt. Gleichzeitig ist die Position des platzierten Quantenpunktes optimal bezüglich des Stromflusses, der von der Apertur begrenzt wird.

Um den Oxidationsprozess hinreichend genau kontrollieren zu können, wurden mehrere unabhängige Maßnahmen implementiert. Zum Einen ermöglichte eine *In-situ*-Erweiterung des Oxidationsofens eine genaue Kontrolle der Reaktionszeit. Zum Anderen wurde die Homogenität der Heizoberfläche ausgemessen und eine optimale Position mit dem geringsten Temperaturgradienten ermittelt (s. Abschnitt 4.4.5). Das Layout mit der Gradation der Mesendurchmesser erlaubte es außerdem, die Kontrolle der Oxidation auf einen mehrere Mikrometer breiten Toleranzbereich zu begrenzen: Homogene Oxidationsgeschwindigkeit vorausgesetzt, hängt der Durchmesser der Apertur allein von der Größe der Mesa ab. Rasterkraftmikroskop-Aufnahmen in der Abbildung 3.5 zeigen InGaAs-Quantenpunktformationen auf drei Mesen mit Durchmessern von 20 μm, 14 μm und 13,2 μm. Das Wachstum der Schichtstruktur und der Quantenpunkte wurde in einer metallorganischen Gasphasenepitaxieanlage (MOVPE) durchgeführt. Auf der großen Mesa folgen die Quantenpunkte dem Rand der Apertur. Die Apertur hat eine Ausdehnung von ca. $(2 \times 2)\,\mu m^2$. Übereinstimmend mit der roten Kurve der Simulation in Abbildung 3.4 (links unten) nukleieren Quantenpunkte an den Stellen höchster tensilen Verspannung, also oberhalb der Aperturkante. Bei der 14 μm-Mesa ist die Apertur kleiner als 1 μm, die Verspannungsmaxima rücken näher zusammen und bilden ein ausgedehntes Plateau. Die Aufnahme zeigt ein Quantenpunktcluster oberhalb

der Apertur. Bei der letzten Mesa mit 13,2 μm Durchmesser ist die Apertur kleiner als 500 nm und damit das Verspannungsmaximum schmal genug, so dass sich nur zwei Quantenpunkte gebildet haben. Die Vermessung der optischen Eigenschaften der Quantenpunkte mit Hilfe der Kathodolumineszenz (CL)- und der Mikrophotolumineszenz (μPL)-Spektroskopie zeigte hervorragende Resultate. Sowohl die Halbwertsbreite und die spektrale Diffusion einzelner Quantenpunktlinien, als auch die optische Qualität der Quantenpunkte wurde verbessert [42, 43]. Die Einfachheit des Positionierungsverfahrens und die bemerkenswerte Güte der Quantenpunkte motivierte die Herstellung des ersten elektrisch betriebenen Bauelements auf der Basis verspannungsinduzierter Quantenpunktpositionierung und wurde im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich umgesetzt.

3.3.2 Layout eines elektrisch gepumpten Bauelements mit platzierten Quantenpunkten

Der Einsatz der vorgestellten Positionierungstechnik in einem elektrisch gepumpten Bauelement bedarf einer umfangreichen Weiter- und Neuentwicklung des bestehenden Bauelementdesigns. Das epitaktische Überwachsen einer zuvor strukturierten und oxidierten Oberfläche stellt sowohl das Wachstum als auch die Prozessierung vor Probleme, die gelöst werden mussten. Auch die bisher angewandte Kontaktierung der p- und n-dotierten Schichten von oben, also von der Epitaxie-Seite, führt zwar zu kürzeren Strompfaden innerhalb des Substrats, ist jedoch mit einem deutlich höheren Prozessaufwand verbunden. Die potentielle Hochfrequenztauglichkeit des Designs wurde durch Layout der Stromzuleitungen, Größe der Kontaktflächen und Drahtbonden auf einem Chipträger konterkariert (s. Abb. 3.6).

Die Implementierung aller gewünschten Eigenschaften wie einfache elektrische On-Wafer-Kontaktierbarkeit in einem Probenkryostaten, Chip- und Drahtbondmöglichkeit, Hochfrequenztauglichkeit, hohe Packungsdichte, geringer Prozessaufwand und hohe Prozessfehlertoleranz in einem Design würde aufgrund der zu treffenden Kompromisse keiner der Eigenschaften angemessene Rechnung tragen. Eine Aufspaltung des Layouts in zwei unabhängige Ansätze wurde notwendig. Das erste Layout ist in Abb. 3.7 links dargestellt. Es ist einfach gehalten, um schnelle Konzeptprüfungen mit möglichst wenigen Prozessschritten und hoher Fehlertoleranz zu ermöglichen. Auf Hochfrequenztauglichkeit und hohe Packungsdichte wurde zugunsten einfacher Prozessierung und schneller Herstellung verzichtet. Beibehalten wurden die einfache Drahtbondmöglichkeit und die Möglichkeit der Kontaktierung mit einer einzigen Spitze in einem Kryostaten. Das zweite Design in Abb. 3.7 rechts ist angelehnt an eine typische VCSEL-Struktur. Hierbei wurde eine hohe Packungsdichte und GSG-Kontaktierung in den Vordergrund gestellt. Ein GSG-Layout verringert Dämpfungsverluste in den Zuleitungen und reduziert Reflektionen durch Impedanzanpassung. Damit ist ein einfacher Zugang zu zeitaufgelösten

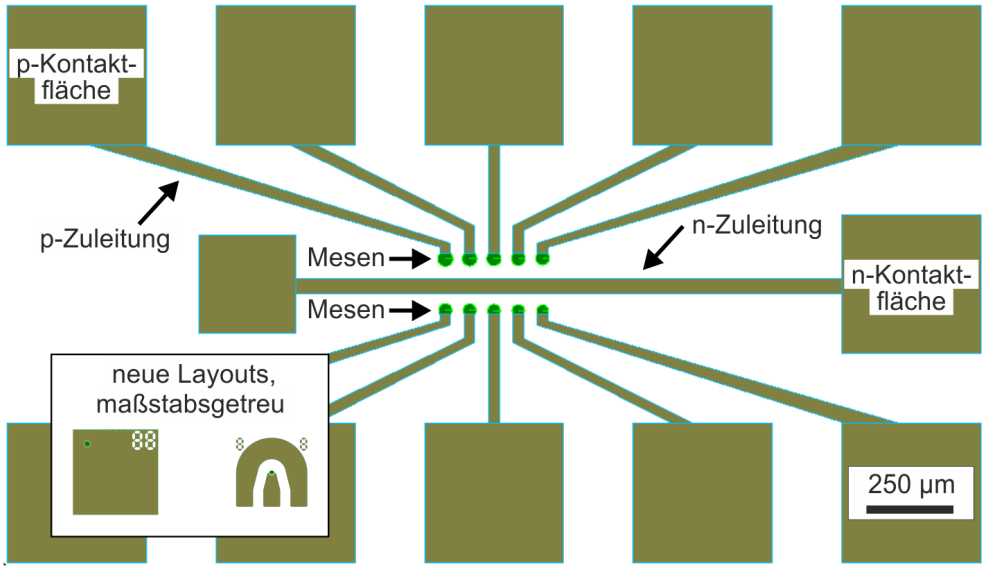


Abbildung 3.6: Dargestellt sind die Maske des ursprünglichen Layouts zur Herstellung von Einzelphotonenemittern und eine maßstabsgetreue Abbildung der neuen Layouts aus Abb. 3.7. Die ursprüngliche Einheitszelle besteht aus zehn kontaktierten Mesen mit einem variierenden Durchmesser zwischen 34 μm und 43 μm. Neben den p-Kontaktflächen liegt auch der n-Kontakt auf der Oberseite des Wafers. Damit verringert sich die Packungsdichte und der Herstellungsprozess muss im Gegensatz zum neuen Layout um mehrere Prozessschritte erweitert werden (s. Abschnitt 4.4.1 auf S. 66). Die großen Kontaktflächen und die langen Zuleitungen erzeugen zusätzliche parasitäre Kapazitäten und Induktivitäten.

Messungen an einzelnen Quantenpunkten oder spätere Implementierung in Kommunikationssysteme realisierbar. Bei dem zweiten, anwendungsorientierten Design kann auf das in der Arbeitsgruppe vorhandene umfangreiche Wissen um Hochfrequenzbauelemente zurückgegriffen werden.

Ein mit dem ersten Design hergestelltes Bauelement besitzt nur einen oberen p-Kontakt, die n-Zuleitung ist als Rückseitenkontakt ausgeführt. Diese Vereinfachung erübrigt zwei Lithographieschritte und eine Trockenätzung (s. Abschnitt 4.4.2). Der quadratische p-Kontakt hat eine Kantenlänge von 250 μm, der Abstand zum nächsten Kontakt beträgt 50 μm (s. Abb. 3.7 links). Die Fläche ist groß genug sowohl für manuelles Bonden mit einem zweikomponentigen und leitenden Epoxidharz (EPO-TEC H20E) als auch für halbautomatisches Bonden mit einer zur Verfügung stehenden Bondmaschine des Typs F&K Delvotec 5410. Die Größe der Kontaktfläche erwies sich insofern nützlich, als dass die ersten Bondversuche mit der Bondmaschine allesamt negativ verliefen. Alle Dioden zeigten nach einem Bondversuch Unterbrechung des Stromkreises. Eine naheliegende Erklärung ist die mechanische Einwirkung während des Bondvorgangs sowohl durch Ultraschall als auch durch mechanisches Anpressen

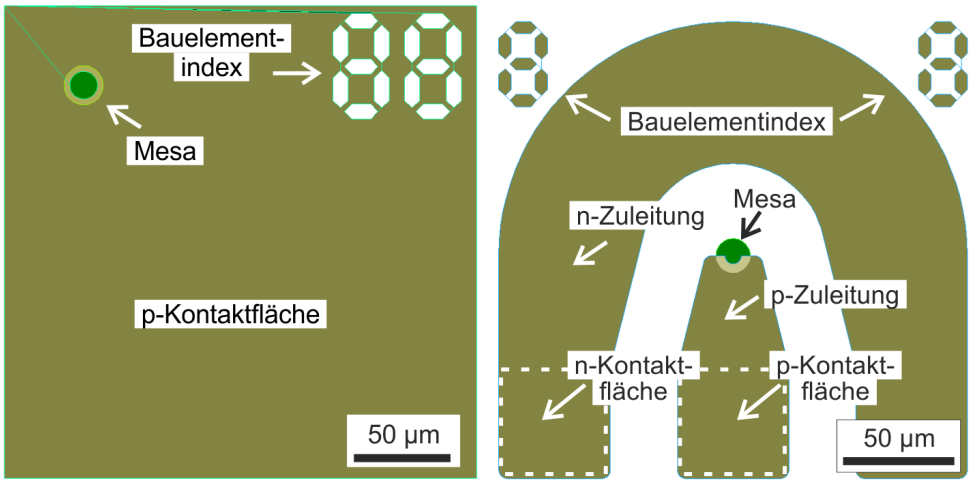


Abbildung 3.7: Dargestellt sind die Masken zweier im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Layouts zur Herstellung von Einzelphotonenemittern. Das Layout links ist für eine schnelle und einfache Prozessierung mit hoher Ausbeute ausgelegt. Verglichen mit dem alten Layout in Abb. 3.6 stieg die Packungsdichte um 638%. Aufgrund des rückseitig angebrachten n-Kontaktes wurden mehrere Prozessschritte deutlich vereinfacht und mehrere überflüssig (s. Abschnitt 4.4.2 auf S. 71). Dieses Layout erlaubt schnelle und zuverlässige Prototypenherstellung kombiniert mit der Möglichkeit, die Bauelemente manuell oder halbautomatisch mit einem Drahtbonder zu kontaktieren. Das rechte Layout wurde für Einzelphotonenemission mit hoher Taktrate der elektrischen Anregung entwickelt und ist für eine 80 μm Hochfrequenz-Messspitze ausgelegt. Das manuelle Kontaktieren ist nicht mehr vorgesehen. Das Bonden mit einem Drahtbonder ist bei $50 \times 50\,\mu m^2$ großen Kontaktflächen und 30 μm Zwischenabstand noch möglich. Gegenüber dem alten Layout stieg die Packungsdichte um 849%. Der an die Messspitze angepasste Wellenwiderstand der Zuleitungen reduziert Reflexionsverluste, die bei hochfrequenter Einkopplung auftreten.

des Golddrahtes an die Kontaktfläche. Das manuelle Bonden mit leitendem Epoxidkleber brachte hingegen zufriedenstellende Resultate. Daraus lässt sich ein technologisches und kein grundsätzliches Problem ableiten. Aktuell ist es noch nicht gelöst und trat aufgrund der Anschaffung eines Kryostaten mit Kontaktspitzen in den Hintergrund. Mögliche Lösungsansätze sind eine räumliche Trennung der mechanisch zu belastenden Kontaktfläche und der Diodenstruktur, was allerdings zu geringerer Packungsdichte führen würde. Die Verbesserung der strukturellen Stabilität der Schichtfolge durch Einbringen von Schichten mit einem kontinuierlichen Konzentrationsgefälle des Aluminiums von der AlAs-Schicht zu GaAs-Umgebung ist eine andere Alternative. Die Gesamtausdehnung eines Bauelements beträgt $(300 \times 300)\,\mu m^2$, eine Einheitszelle besteht aus 15×14 Bauelementen. Zur genaueren Kontrolle der Aperturgröße wird in den 15 Spalten der Durchmesser zwischen 22 μm und 24,8 μm in 200 nm Schritten variiert, Mesen innerhalb einer Spalte bleiben gleich.

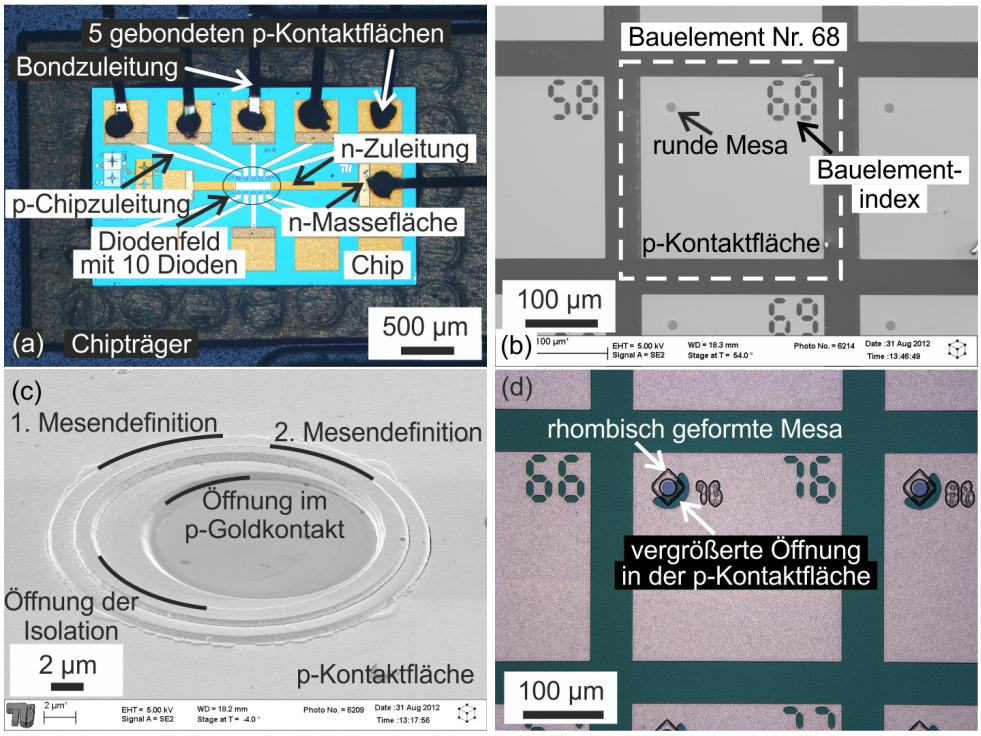


Abbildung 3.8: Rasterelektronenmikroskopaufnahmen (REM) und optische Mikroskopaufnahmen von prozessierten Chips mit dem alten und neuen Layout der Bauelemente. Die Lichtmikroskopaufnahme (a) zeigt das ursprüngliche, deutlich komplexere Design mit fünf manuell gebondeten Dioden und Masse. Der Chip ist auf einem Chipträger angebracht. Sowohl der p- als auch der n-Kontakt befinden sich auf der Oberfläche für bessere Hochfrequenzeigenschaften. Jedoch ist die Ausführung der Kontaktflächen, Chip- und Bondzuleitungen nicht hochfrequenztauglich. Der Herstellungsprozess wird durch die oben liegende n-Zuleitung unnötig erschwert. REM-Aufnahme (b) des neu entwickelten Rückseitenkontakt-Layouts weist nur eine obere p-Kontaktfläche auf. Das Aufbringen des n-Kontakts auf der Waferrückseite steigert deutlich die Packungsdichte, erleichtert die Herstellung und verbessert die Prozesszuverlässigkeit. Unter (c) ist eine Nahaufnahme der Mesa dargestellt. Sichtbar sind die raue Goldfläche als p-Zuleitung und eine nicht ganz konzentrisch liegende glatte Öffnung im Metall zur Auskopplung der Photonenemission. Weitere konzentrische Kreise sind während des Herstellungsprozesses der LED entstanden (s. Abschnitt 4.4.2). Unter (d) ist ein modifiziertes Rückseitenkontakt-Layout abgebildet. Eine rhombische Mesa erlaubt ein defektfreies epitaktisches Überwachsen der Grundstruktur mit einem oberen DBR-Spiegel. Eine größere Goldöffnung wurde notwendig, um Adhäsion der Lift-off-Lackschicht zu verbessern.

Die Abbildung 3.8 (a) zeigt das ursprüngliche, nicht hochfrequenztaugliche Design mit fünf kontaktierten Bauelementen (s. Abb. 4.4). Die übrigen drei Teilabbildungen sind Mikroskop- und REM-Aufnahmen der Bauelemente hergestellt mit dem neuen Design mit Rückseitenkontaktierung. Die Aufnahme

(c) ist eine Vergrößerung der metallüberdeckten Mesa mit einer Öffnung zur Lichtauskopplung. Die Größe des gesamten Bauelements ist durch die für das Bonden notwendige Ausdehnung des p-Kontakts festgelegt (b). In späteren Modifikationen haben die Mesen andere Durchmesser und geringere Schrittweiten, auch ihre Form wurde von rund zu rhombisch verändert. Dies war notwendig, um auf der Oberfläche der Mesa neben der aktiven Zone auch einen oberen Bragg-Spiegel abzuscheiden. Es stellte sich heraus, dass Bragg-Spiegel bei runden Mesen stets Wachstumsdefekte an bestimmten Kristallebenen aufweisen. Die Vermeidung dieser Ebenen mit einer quadratischen Mesa ermöglichte eine erfolgreiche Einbettung eines platzierten Quantenpunktes in einen Mikroresonator. Auch die Öffnung im Goldkontakt zur Auskopplung des Lichts wurde von rund zu einer etwas komplizierteren Form verändert, um genügend Fläche für Adhäsion der Negativresist-Maske bereitzustellen (s. Abb. 3.8 (d)).

Das Hochfrequenz-Layout ist als ein Streifenleiter aufgebaut. Die Metall-Halbleiterkontakte sind beide oben ausgeführt, um möglichst kurze Strompfade zur aktiven Zone zu erhalten. Die Goldzuleitungen und die Mesa sind in der Abbildung 3.7 rechts dargestellt. Zur Reduktion der parasitären Kapazität der p-Zuleitung wird als Isolationsschicht an Stelle von Siliziumnitrid ein Benzocyclobuten-basiertes Polymer mit einer geringeren Permittivität ($\epsilon_{r,\,Si_3N_4} = 7$, $\epsilon_{r,\,BCB} = 2{,}6$) verwendet. Es dient gleichzeitig der Planarisierung der Oberfläche, um die Höhendifferenz beim Aufdampfen der p-Zuleitung zwischen der Oberfläche der Mesa und weggeätzter Umgebung auszugleichen. Signalflächen zum Absetzen einer GSG-Kontaktspitze messen $(50 \times 50)\,\mu m^2$ und der Zwischenabstand beträgt $30\,\mu$m. Ein Bauelement hat eine Gesamtausdehnung von $(260 \times 260)\,\mu m^2$, die Packungsdichte ist also etwas höher als beim Rückseitenkontakt-Layout. Bislang wurde noch keine Probe mit dem GSG-Maskensatz prozessiert.

3.4 Mikrolinsen

Die im Kapitel 2.6 vorgestellten Mikrolinsen als Ansatz zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz bedürfen einer Modifikation des Rückseitenkontakt-Designs. Für die Linsenstrukturierung wird ein PMMA-Resist verwendet. Er muss eine Schichtdicke von ca. 200 nm aufweisen, damit die CL-Spektroskopie und Lithographie möglich sind. Dies ist mit dem bisherigen Layout nicht vereinbar, denn die geätzten Mesen sind mindestens 300 nm hoch. Eine homogene Oberflächenbedeckung der Mesa mit konstanter Schichtdicke ist so nicht möglich, jedoch notwendig, damit die mit Elektronenstrahl belichtete Linsenform während der anschließenden Ätzung identisch in den Halbleiter übertragen wird. Andererseits muss die Seitenfläche der Mesa frei für den Oxidationsprozess sein, um die Vorteile der Quantenpunktpositionierung und Stromführung beizubehalten. Um beide Konzepte zu verbinden, wurde an Stelle der ersten Mesenmaske eine Grabenmaske entwickelt. Tests haben gezeigt, dass ringförmige Gräben mit einem Durchmesser zwischen $20\,\mu$m und $30\,\mu$m, 300 nm Tiefe

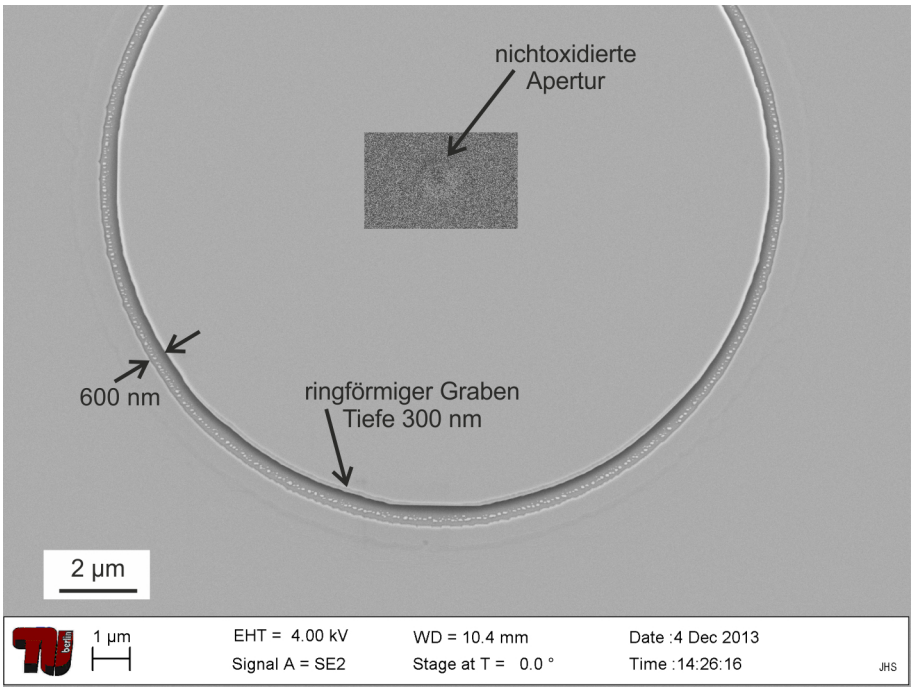


Abbildung 3.9: CL-Spektroskopie durch eine Resistschicht und anschließende *In-situ*-Elektronenstrahllithographie am demselben Resist zur Herstellung von z. B gezielt platzierten Mikrolinsen sind nur bei sehr dünnen Resistdicken von ca. 200 nm möglich. Rauigkeit einer mit Mesen strukturierten Oberfläche verhindert gleichmäßiges Aufschleudern des Resists und damit die Herstellung einer homogenen Resistschicht, wie sie für die Lithographie notwendig ist. Die Lösung des Problems bestand darin, die Mesenstrukturen nur durch 600 nm breite und 300 nm Gräben zu definieren. Der Ansatz verbindet die Vorteile einer flachen Topographie mit der Möglichkeit der Oxidation einer Apertur in beliebig geformten Mesenstrukturen. Dargestellt ist eine REM-Aufnahme einer ringförmigen Grabenstruktur, welche oxidiert und bereits mit einer 50 nm GaAs-Schicht, InGaAs-QP- und 5nm GaAs-Deckschicht überwachsen wurde. Der zentrale Bereich ist nachbearbeitet, um die Form und Ausdehnung der Oxidapertur hervorzuheben. Das Wachstum weist keine Defekte auf. Im anschließenden Test aufgebrachte PMMA-Resistschicht war ausreichend homogen und wurde in ihrer Topografie von der Grabenstruktur nicht beeinflusst.

und 600 nm Grabenbreite mit dem verwendeten UV-Belichter auf der gesamten 2″-Oberfläche hergestellt und anschließend die vergrabene AlAs-Schicht oxidiert werden kann. Abbildung 3.9 zeigt eine REM-Aufnahme einer Teststruktur mit einem ringförmigen Graben. Die Struktur wurde oxidiert und mit 50 nm GaAs, InGaAs-QD-Schicht und 5 nm GaAs-Deckschicht überwachsen. Der zentrale Bereich ist nachbearbeitet, um die Apertur deutlicher darzustellen. Die Form und Ausdehnung der Apertur sind identisch mit einer normalen Mesenstruktur. Auch der PMMA-Lack verhielt sich beim Aufschleudern wie auf

einer flachen Oberfläche, so dass demnächst ein Bauelement mit positioniertem Quantenpunkt und einer Mikrolinse hergestellt werden kann.

Ein weiterer Vorteil ist eine nahtlose Integration in den bisherigen Prozessfluss. Nur die erste Mesenmaske muss ausgetauscht werden. Alle nachfolgenden Prozessschritte bleiben davon unberührt, sowohl bei Rückseitenkontakt- als auch bei Hochfrequenzlayout.

3.5 Steigerung der Auskoppeleffizienz durch adiabatische Expansion

In der Publikation [58] der Arbeitsgruppe um Jean-Michel Gérard erschien ein vielversprechender Ansatz zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz eines Quantenpunkt-basierten Einzelphotonenemitters. Sie untersuchten einen vertikalen photonischen Nanodraht (photonic nanowire), dessen Vorteile laut der Publikation in breitbandiger Kontrolle der spontanen Emission und effektiver Lichtauskopplung in eine Sammeloptik lagen. Der zylindrische Nanodraht mit einem Durchmesser zwischen 100 nm und 300 nm und einer Höhe von 2,5 μm besteht aus einem hochbrechenden Material wie z. B. GaAs, in welchem sich ein Quantenpunkt befindet. Das umgebende niedrigbrechende Material wie z. B. Luft führt zu starkem Confinement der fundamentalen geführten HE_{11}-Mode innerhalb des Nanodrahtes. Das im Abschnitt 2.6 angesprochene Problem der Lichtauskopplung aus einem hochbrechenden Medium wird bei diesem Ansatz zwar durch die starke Streuung an der sub-μm-Auskoppelapertur des Nanodrahts erschwert, kann jedoch durch einen sich konisch zuspitzenden oder ausweitenden oberen Teil des Nanodrahts umgangen werden. Bei einem geringen Öffnungswinkel des Konus expandiert während der Bewegung zur Auskoppeloberfläche die HE_{11}-Mode adiabatisch in die niedrigbrechende Umgebung. Im Fernfeld erhält man dadurch eine schmale gaußförmige Feldverteilung und keine weitwinklige Emission.

Negativ zu erwähnen sind die immer wieder auftauchende Frage nach der Wahrscheinlichkeit, einen Quantenpunkt innerhalb eines Nanodrahtes zu finden sowie die ungleich höhere Komplexität und verringerte Massentauglichkeit der Bauelementherstellung im Submikrometerbereich. Die elektrische Kontaktierbarkeit einer derartigen Struktur ist eine zusätzliche Herausforderung.

Der Effekt der adiabatischen Expansion ist jedoch nicht auf Nanodrähte beschränkt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Konzept zum Einsatz des Effektes in einer RCLED-Struktur erarbeitet. Der Grundgedanke war, mehrere AlGaAs-Schichten oberhalb eines Emitters zu platzieren und diese unterschiedlich tief zu oxidieren, um eine analoge konische Struktur aller oxidierten Fronten herzustellen (s. Abb. 3.10). Da der Brechungsindex von Al_2O_3 mit $n(950\,nm) = 1{,}76$ auch niedrigbrechend ist, kann man durch eine konisch gestaltete Form den Effekt der adiabatischen Expansion ausnutzen. Der Öffnungsschnitt der Aperturen kann im Gegensatz zu einem konischen Nanodraht sogar beliebig gestaltet werden. Es kann z. B. die untere Apertur einen kleinen Durchmesser haben,

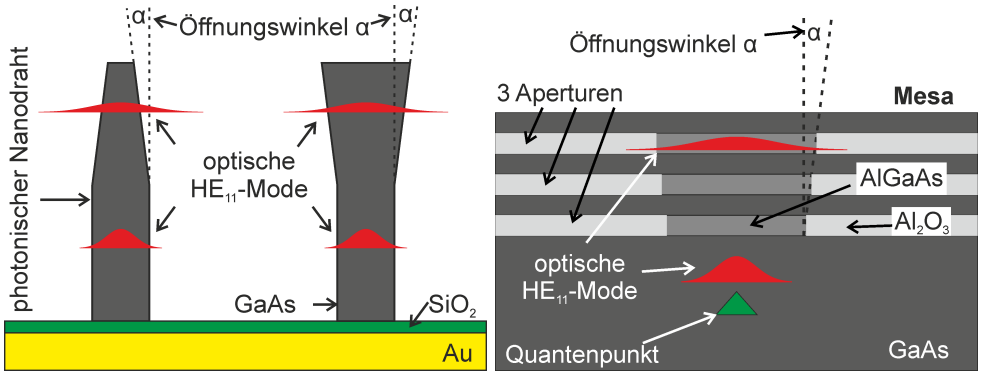


Abbildung 3.10: Links: schematische Darstellung photonischer Nanodrähte mit konisch zuspitzender und ausweitender Öffnung (abgeändert entnommen aus [58, 59]). Die geführte fundamentale HE_{11}-Mode breitet sich während der Propagation im Auskoppelabschnitt adiabatisch in die niedrigbrechende Umgebung aus. Dies führt im Fernfeld zu einer schmalen gaußförmigen Verteilung der Lichtemission, die mit hoher Effizienz von einer Sammeloptik eingefangen werden kann. Rechts: im Rahmen dieser Arbeit wurde anhand von dreidimensionalen Simulationsberechnungen der Einsatz und die Effektivität der adiabatischen Expansion in einer RCLED-Struktur untersucht. Das konische Brechungsindexprofil wurde mit mehreren unterschiedlich tief oxidierten aluminiumhaltigen Schichten nachgebildet. Der untere DBR-Spiegel wurde zur besseren Übersicht weggelassen. Die schichtförmige Struktur des Brechungsindexprofils verschlechtert nur geringfügig die Effektivität gegenüber einem gleichförmigen Formverlauf (links), wenn die oxidierten Schichten jeweils im Maximum des stehenden Lichtfeldes platziert werden. Der Einsatz mehrerer Aperturen ist eine einfache und elegante Methode zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz. Die Schichtstruktur zur adiabatischen Expansion der Lichtmode kann auch in einem hybriden Ansatz mit oberem DBR-Spiegel, positionskontrollierten Quantenpunkten oder mit Mikrolinsen eingesetzt werden.

die darüber einen größeren, und die dritte ganz oben wieder klein sein.

Die Effektivität des Ansatzes wurde anhand von Simulationen nachgewiesen. Nachfolgend werden die verwendete Simulationsmethode und die Ergebnisse der Modellierung vorgestellt.

3.5.1 Simulationssoftware

Die Simulationen wurden mit dem Programmpaket MEEP (MIT Electromagnetic Equation Propagation) durchgeführt, einer freien Implementierung der Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich (engl. *Finite Difference Time Domain*, FDTD). Es ist ein mathematisches Verfahren zur numerischen Lösung zeitabhängiger Differentialgleichungen. In der vorliegenden Umsetzung zur Berechnung der Zeitentwicklung von elektromagnetischen Feldern handelt es sich um Maxwell-Gleichungen. Das Programmpaket wurde entwickelt am Massachusetts Institute of Technology unter GNU GPL-Lizenz und ermöglicht

Simulationen in 1d, 2d, 3d und zylindrischen Koordinaten. Durch Unterstützung von Linux und Message Passing Interface (MPI) für parallele Berechnungen war es möglich, das Programmpaket auf dem Cluster der Arbeitsgruppe auszuführen und damit die Rechenzeit zu verringern.

Im Gegensatz zur früher verwendeten Methode der Eigenmoden-Expansion, die im Abschnitt 3.2 vorgestellt wurde, rechnet MEEP auf einem endlichen rechteckigen Gitter im Raum und Zeit. Die Stärke einer Simulation im Zeitbereich liegt in der Möglichkeit, das gesamte Antwortspektrum und die Eigenmoden eines Systems nach nur einer Simulation zu erhalten. Dazu regt man das System mit einem kurzen Puls an, der im Frequenzraum den zu untersuchenden Spektralbereich abdecken sollte. Nachdem die Anregung ausgeschaltet wird, findet man im System immer noch Felder, die langsam abklingen. Aus der Bestimmung ihrer Frequenzen und Abklingraten kann die Resonanzfrequenz und die Güte der Eigenmoden eines Resonators bestimmt werden. Mit einer spektral schmalen Anregung einer Resonatormode können andere Parameter, wie z. B. das Modenvolumen, bestimmt werden.

Zur Simulation von unendlich ausgedehnten Strukturen verwendet MEEP analog zu CAMFR PML-Schichten, die von Berenger im Jahre 1994 vorgeschlagen wurden [60]. Sie haben typischerweise eine endliche Ausdehnung von mehreren Wellenlängen und werden angrenzend an den Rändern des Berechnungsvolumens eingesetzt. Eine PML-Schicht ist so definiert, dass an ihren Grenzflächen keine Reflexionen auftreten und eine innerhalb dieser Schicht propagierende elektromagnetische Welle beliebiger Frequenz absorbiert wird.

3.5.2 Validierung des Programmpakets anhand einer analytischen Lösung

Die in der Simulation gewählten Rahmenbedingungen und Parameter wie die Dicke der PML-Schichten, die Feinheit der Diskretisierung von Raum und Zeit, die Beschaffenheit der Dipolquelle aber auch die allgemeine Tauglichkeit des Paketes zur Bestimmung des Purcell-Faktors müssen vor einer weiteren Verwendung belastbar überprüft werden. Typischerweise benutzt man hierzu eine Struktur, die analytisch gelöst werden kann. Wenn die Simulationssoftware die analytische Lösung in guter Näherung reproduzieren kann, dann ist das Programmpaket für weitere Berechnungen geeignet. Hierzu eignet sich ein planarer Mikroresonator, der aus zwei unendlich ausgedehnten perfekten Spiegeln besteht. Die Veränderung der spontanen Emissionsrate eines Dipols in einem derartigen Resonator ist analytisch zugänglich [61] und wurde auch experimentell bestätigt [62].

In Abbildung 3.11 sind die Struktur, analytische Lösung und Simulationsergebnisse dargestellt. Das Berechnungsvolumen ist von absorbierenden PML-Schichten umgeben. Der Dipol befindet sich mittig zwischen zwei perfekt reflektierenden Spiegeln und das elektrische Dipolmoment ist parallel zu den Spiegeln ausgerichtet. Simuliert wird die Zeitentwicklung des elektromagnetischen Feldes. Zur Quantifizierung des Einflusses der Struktur definiert man

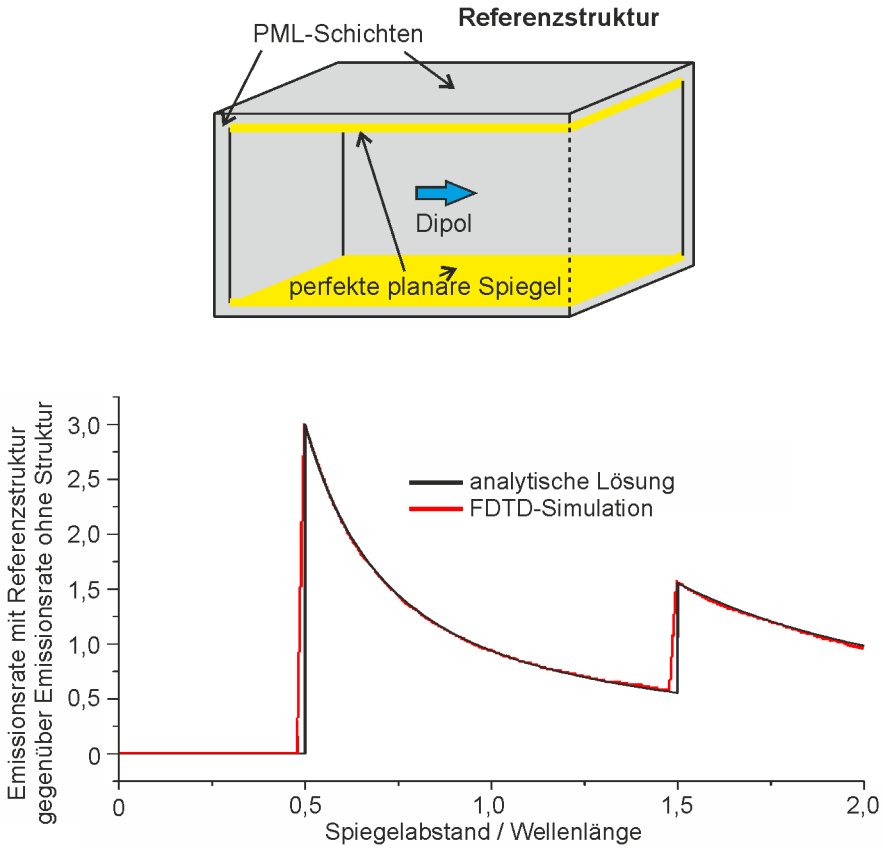


Abbildung 3.11: Validierung der Simulationssoftware anhand einer Referenzstruktur mit bekannter analytischer Lösung. Die Referenzstruktur bestehend aus zwei perfekten planaren Spiegeln (gelb) ist in der oberen Abbildung dargestellt. Die Spiegel sind unendlich ausgedehnt. In der Mitte zwischen den Spiegeln liegt ein Dipol, der parallel zu den Spiegelflächen ausgerichtet ist. Das Berechnungsvolumen ist von grauen PML-Schichten umgeben. Die analytische Lösung und das Simulationsergebnis sind unten als Abhängigkeit der Emissionsrate vom Spiegelabstand in Wellenlängeneinheiten dargestellt. Für den Fall der halben Wellenlänge erhält man verdreifachte Emissionsrate des Dipols senkrecht zu den Spiegeln. Das Ergebnis der Simulation stimmt hervorragend mit der analytischen Lösung überein.

eine Fläche innerhalb des Resonators mit dem Normalenvektor in Richtung der erwünschten Emission des Dipols und integriert die Flussdichte über die Fläche und Zeit. Die Simulationszeit sollte ausreichend lang gewählt werden, damit die Felder Zeit haben, die Struktur zu verlassen und abzuklingen. Nach dem Durchlaufen erhält man den spektralen Gesamtfluss durch die definierte Fläche. Diesen vergleicht man mit einer Referenzsimulation ohne jegliche Struktur, also mit ungestörten Dipolemission in den freien Raum. Der Quotient ergibt die spektrale Veränderung der Emissionseigenschaft des Dipols durch Anwesenheit einer Struktur.

Die Simulationsergebnisse geben sehr gut die analytische Lösung wieder, womit die Tauglichkeit für weitere Modellierungen gegeben ist. Als Nächstes wird eine bereits existierende RCLED-Struktur zu Vergleichszwecken simuliert. An ihr wird der neue Ansatz der adiabatischen Expansion auf sein Potential in einer RCLED-Mesenstruktur untersucht.

3.5.3 Simulation einer Resonant Cavity LED-Mesenstruktur

Um den Einfluss der zusätzlichen Aperturen auf die Emissionswahrscheinlichkeit eines Dipols und Auskoppeleffizienz in eine Sammeloptik mit numerischer Apertur von 0,5 zu untersuchen, werden sie in eine RCLED-Struktur an Stelle des oberen DBR-Spiegels eingesetzt. Der Einfluss kann dann als Modifikation der Eigenschaften der veränderten RCLED qualitativ und quantitativ erfasst werden. Dazu wird zunächst eine RCLED-Struktur simuliert.

Die Referenzstruktur besitzt 13 untere und 9 obere Spiegelpaare, die einen Resonator der optischen Länge von $3/2\lambda$ einschließen. Das Berechnungsvolumen beträgt ca. $100\,\mu m^3$. Der untere und obere DBR-Spiegel bestehen aus Paaren von $GaAs$ und $Al_{0,9}Ga_{0,1}As$ mit entsprechend 59 nm und 69 nm Dicke. Der Übergang von einer zur anderen Schicht ist nicht abrupt. Eine zusätzliche 10 nm-dicke Zwischenschicht mit einem Aluminium-Konzentrationsgradienten wird zur Vermeidung von Verspannungen und eventuellem Schichtabriss während Oxidation eingesetzt. Oberhalb der aktiven Zone mit einem zentral und senkrecht zur Wachstumsrichtung liegenden Dipol, der einen Quantenpunkt simulieren soll, liegt eine zu oxidierende AlAs-Schicht. Ihre Oxidationsfront wurde in der Simulation als rund mit einem Durchmesser von 0,5 μm angenommen. Die untere GaAs-Pufferschicht und obere GaAs-Kappschicht betragen 300 nm und 196 nm.

Die simulierte RCLED-Struktur ist in der Abbildung 3.12 links dargestellt. Die Grauwerte geben die verwendeten Brechungsindizes wieder: schwarz entspricht der höchsten verwendeten GaAs-Brechzahl und weiß der Luft. Die in der Simulation benutzten Brechungsindizes der Materialien sind in der Tabelle 3.1 festgehalten. Sie entstammen der öffentlich zugänglichen Datenbank des französischen Unternehmens Sopra S.A. Die Datenbank wurde bereitgestellt von M. Polyanskiy unter [63]. Die Brechungsindizes der weiter oben erwähnten Schichten mit Al-Konzentrationsgradienten wurden linear interpoliert.

Das rechte Bild der Abb. 3.12 zeigt eine Momentaufnahme der Energiedichte

Tabelle 3.1: Brechzahlen der in der Simulation verwendeten Materialien bei 965 nm. Werte entstammen der öffentlich zugänglichen Datenbank des französischen Unternehmens Sopra S.A. [63]

Material:	Luft	Al_2O_3	$AlAs$	$Al_{0,9}Ga_{0,1}As$	GaAs
n(965 nm):	1,000	1,755	2,971	3,027	3,531

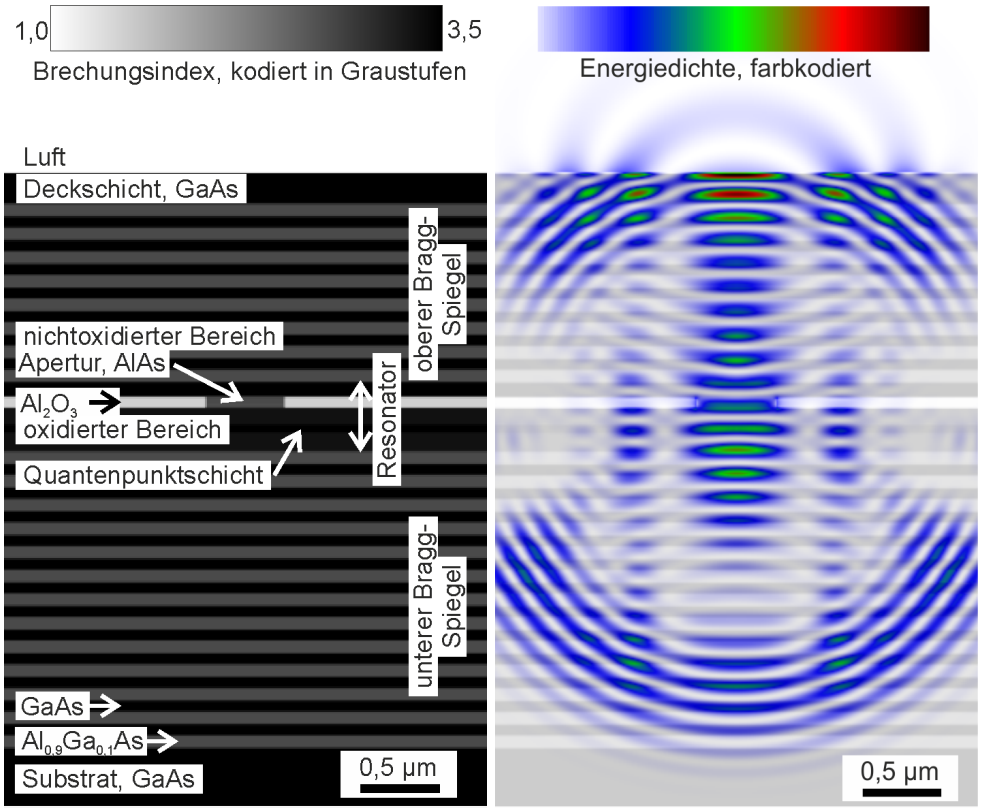


Abbildung 3.12: Dargestellt ist eine Simulation der RCLED-Grundstruktur, die als Vergleichsstruktur für Simulationen der adiabatischen Auskopplung im nachfolgenden Abschnitt 3.5.4 dienen soll. Links: RCLED-Struktur mit in Grauwerten kodierten Brechzahlen der verwendeten Schichten. Weiß entspricht Luft, Schwarz dem GaAs (s. Tabelle 3.1). Der Durchmesser der Apertur beträgt 0,5 μm. Rechts: Ausbreitung des elektromagnetischen Feldes. Dargestellt ist eine Momentaufnahme der Energiedichte $\mathbf{E}^* \cdot \mathbf{D}$ kurz nach dem Abklingen der Dipolanregung. Die Höhe der Energiedichte ist farbkodiert dargestellt. Die Normierung bezieht sich auf den maximal aufgetretenen Wert zum Simulationszeitpunkt.

des elektrischen Feldes $\mathbf{E}^* \cdot \mathbf{D}$ während der Auskopplung aus der Struktur in den freien Raum. Die impulsartige gaußförmige Anregung ist transform-limitiert und entspricht im Frequenzraum einem gaußförmigen Spektrum mit einer Zentralfrequenz von 965 nm und ca. 245 nm Halbwertsbreite. Innerhalb dieses relativ breiten Spektrums von ca. 850 nm bis 1100 nm kann der Einfluss der RCLED-Struktur auf die Emissionseigenschaft eines Dipols untersucht werden, indem ein Quotient der spektralen Emission eines eingebetteten und eines freien Dipols gebildet wird. Der Spektralbereich außerhalb der Halbwertsbreite ist nicht mehr aussagekräftig, denn bei zu geringer Intensität spielen numerische Artefakte eine immer größere Rolle und führen zu signifikanten Abweichungen.

Die dargestellte Energiedichteverteilung entspricht nicht der Darstellung einer oder mehrerer Moden der Struktur, die schmalbandig angeregt werden müssen. Es ist die Verteilung aller im Anregungsimpuls enthaltenen Frequenzen zu einem Zeitpunkt. Damit lässt sich der gesamte zu untersuchende Spektralbereich in nur einem Simulationsdurchlauf analysieren (s. den unteren Graph in Abb. 3.13). Aus dem Abklingverhalten der angeregten Frequenzen innerhalb des Resonators können die Moden und die zugehörigen Qualitätsfaktoren der Struktur bestimmt werden. Zu ihrer Anregung und Visualisierung muss die Struktur schmalbandig und damit zeitlich sehr lange angeregt werden. Nach dem Abklingen der Anregungsquelle bleibt nur die in der Mode gefangene Energie, die nach und nach entsprechend dem Q-Faktor der Mode aus der Struktur ausgekoppelt wird. Eine Visualisierung der Energiedichte des elektromagnetischen Feldes zu diesem Zeitpunkt würde der Energieverteilung der angeregten Mode sehr gut entsprechen.

Die Parameter der Simulation wurden dahingehend gestaltet, dass die Verbesserung der optischen Charakteristik in einem üblichen optischen Aufbau simuliert werden sollte. Dazu war eine Modellierung der Einkopplung in eine Sammeloptik mit einer NA von 0,5 notwendig. Zu diesem Zweck wurde eine entsprechend gestaltete und außerhalb der Struktur positionierte Fläche zur Integration des auftreffenden Feldes verwendet. Die spektral aufgelöste Emissionseigenschaft der simulierten RCLED ist in Abbildung 3.13 dargestellt.

3.5.4 Simulation einer adiabatischen Auskopplung

Die Schichten mit adiabatischer Öffnung der Oxidationsfronten werden anstelle des oberen DBR-Spiegels der RCLED-Struktur platziert. Der Wegfall des oberen Spiegels vergrößert die Ausdehnung des Resonators bis zur GaAs/Luft-Grenzfläche, die auch einen Spiegel darstellt, allerdings mit einer geringen Reflektivität von ca. 31 %. Die Resonatorlänge steigt damit auf 5 Wellenlängen an. Die Position und Durchmesser der ersten Apertur bleibt gegenüber der RCLED-Struktur unverändert. Die zweite Apertur liegt $3/2\lambda$-Wellenlängen weiter und der Durchmesser vergrößert sich um 141 nm auf 641 nm. Damit wird ein Öffnungswinkel von $\alpha = 10°$ realisiert. Entsprechendes gilt für die dritte Apertur: Sie liegt weitere $3/2\lambda$-Wellenlängen weiter und misst 782 nm im Durchmesser. Die drei Schichten der adiabatischen Öffnung haben eine geringere Ausdehnung in Emissionsrichtung verglichen mit den 9 Paaren des oberen DBR-Spiegels, so dass die simulierte Gesamtstrukturhöhe von 4,0 μm auf 3,6 μm verringert werden konnte. Modelliert wurden vier Strukturen: ohne Apertur, mit einer, zwei und drei Aperturen mit Öffnungswinkel von $\alpha = 10°$. So war es möglich, den Einfluss nachfolgender Aperturen qualitativ und quantitativ zu bestimmen.

Die Abbildung 3.13 oben links zeigt die simulierte Struktur mit drei Aperturen. Die rechte Aufnahme stellt die elektrische Energiedichte zum selben Zeitpunkt wie in Abbildung 3.12 (rechts) dar. Ein qualitativer Vergleich zeigt

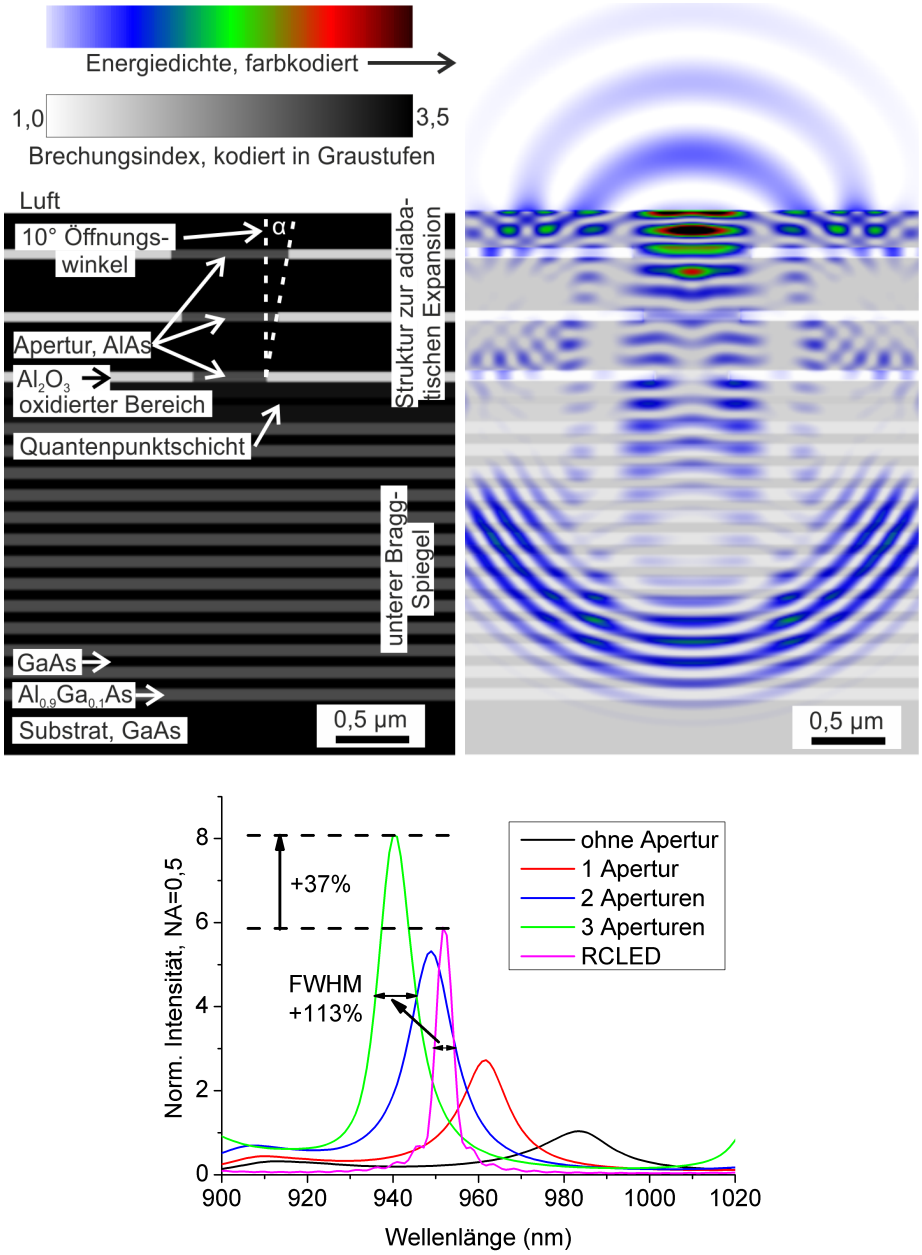


Abbildung 3.13: Modellierung der adiabatischen Auskopplung in einer Mesenstruktur. Links: Drei Aperturen mit einem Öffnungswinkel α von 10° und einem Abstand von 3/2 Wellenlängen untereinander liegen an der Stelle des oberen DBR-Spiegels der RCLED-Grundstruktur. Rechts: Momentaufnahme der Energiedichte zum selben Zeitpunkt wie in Abbildung 3.12. Unten: Quantitative Auswertung der strukturbedingt modifizierten spektralen Auskoppeleffizienz. Dargestellt sind die Simulationen der RCLED-Struktur aus Abschnitt 3.5.3, einer Struktur ohne Apertur und einen oberen Bragg-Spiegel, und dreier Strukturen zur adiabatischen Auskopplung mit einer, zwei und drei Aperturen (Öffnungswinkel 10°). Die Intensität ist normiert auf einen freien Dipol in einer strukturlosen Umgebung. Die Auskoppeleffizienz der Struktur mit drei Aperturen ist um 37% höher gegenüber dem RCLED-Design. Die Halbwertsbreite der verstärkten Mode wurde mehr als verdoppelt.

bereits eine deutliche Abnahme der lateral auskoppelnden Felder in der Region der adiabatischen Öffnung im Vergleich zur RCLED. Die Emission in Richtung der Rotationsachse der Struktur ist am Stärksten ausgeprägt, während bei der RCLED die parallel zur Auskoppeloberfläche laufende Welle höhere Energie aufweist.

Der untere Graph in der Abbildung 3.13 zeigt die Simulationsergebnisse der vier modellierten Strukturen mit variierender Anzahl an Aperturen sowie die RCLED-Referenzstruktur. Die Anregung der Strukturen geschah mittels eines simulierten Dipols im Zentrum der aktiven Zone. Dargestellt sind die in eine Sammeloptik mit NA = 0,5 eingekoppelten normierten Intensitätsspektren $I_{norm}(\omega)$. Eine Normierung ist notwendig, weil das Anregungsspektrum des Dipols $I_{frei}(\omega)$ gaußförmig ist. Es überlagert die spektrale Charakteristik der Struktur und man erhält als spektrale Antwort des Systems $I_{Struktur}(\omega)$. Das normierte Intensitätsspektrum ist ein Quotient aus der Systemantwort und dem Anregungsspektrum:

$$I_{norm}(\omega) = \frac{I_{Struktur}(\omega)}{I_{frei}(\omega)} \,. \tag{3.1}$$

Erwartungsgemäß liefert der Einsatz von drei Aperturen den größten Einfluss auf die Emissionseigenschaft der Struktur. Die Auskopplung wurde verbessert und ist zusätzlich in einem breiteren Spektralbereich nutzbar. Festzuhalten ist, dass durch Einsatz dreier Aperturen mit einer Öffnung von $\alpha = 10°$ die Intensität um 37 % gegenüber der RCLED gesteigert werden konnte. Die spektrale Halbwertsbreite der ausgekoppelten Intensität der RCLED-Struktur ist mit 4,7 nm ca. halb so breit verglichen mit 10 nm bei drei Aperturen. Dies ist vorteilhaft, weil nach dem aktuellen Stand der Wachstumstechnologie die Kontrolle der Größe eines Quantenpunktes, und somit auch seiner Emissionswellenlänge, nur unzureichend sind, um schmale Verstärkungsprofile zu treffen. Die Verbesserung der spektralen Breite steigert analog der räumlichen Positionierung von Quantenpunkten die Ausbeute der Bauelemente.

Die abweichende Lage der Emissionsmaxima der Strukturen mit adiabatischer Öffnung zur RCLED ergab sich aus einer ungenauen analytischen Berechnung der optischen Dicken der Al-Gradientenschichten. Die drei Aperturen bilden einen Bragg-Spiegel, auch wenn dieser aufgrund nur weniger Spiegelpaare eine geringe Reflektivität aufweist. Eine systematische Abweichung in den Abständen führt zur Veränderung der Resonatorlänge und einer Verschiebung des Emissionsmaximums. Im nächsten Abschnitt wird ein weiteres Simulationsexperiment vorgestellt, bei dem keine adiabatische Öffnung, sondern drei unabhängig voneinander veränderbare Aperturen untersucht wurden. Die Struktur wurde auf maximale Intensität hin optimiert, indem die Position und Durchmesser der drei Aperturen unabhängig voneinander und systematisch verändert wurden. Die Abweichung des Emissionsmaximums trat hierbei nicht mehr auf, weil die Abstände nicht mehr analytisch berechnet wurden, sondern sich aus dem Feedback der Auswertung ergaben.

3.5.5 Modellierung optimaler Parameter

Wie zu Beginn des Abschnitts erwähnt, besitzt der Einsatz von oxidierbaren Aperturen in einer Mesenstruktur gegenüber einem vertikalen photonischen Nanodraht den Vorteil, dass die Oxidationsfronten unabhängig voneinander unterschiedlich tief oxidiert werden können, und damit andere als nur konisch gestaltete Formen realisierbar sind. Nachteilig ist dabei der stufenartige Verlauf des Brechungsindexprofils bedingt durch notwendige Zwischenschichten von GaAs. Aufgrund der Verspannung würde nach der Oxidation eine zu dicke Aluminiumoxidschicht die Struktur platzen lassen. Die Aperturschichten sind in den Maxima des stehenden Feldes im Resonator platziert, und die GaAs-Zwischenschichten liegen in den Minima, so dass deren Einfluss minimiert ist.

In diesem Simulationsexperiment wurde das Potential von mehreren Aperturen untersucht, die in ihrer Position und Durchmesser innerhalb wachstums- und prozesstechnischer Begrenzungen frei gewählt werden können. Als Grundstruktur diente wieder die RCLED, bei der der obere Spiegel entfernt wurde. Als Erstes wurde die Position der ersten Apertur von der ursprünglichen Position in der RCLED in 10 nm-Schritten nach oben bis 200 nm verändert. Die gewählte Schrittweite war ein Kompromiss aus Rechenzeit und notwendiger Auflösung, die zur Erkennung der Tendenz und Bestimmung des lokalen Maximums der ausgekoppelten Intensität notwendig war. Bei gleichzeitiger Nutzung von 8 Kernen dauerte eine Simulation ca. 24 Stunden. Lange Simulationszeiten waren notwendig, um eine entsprechend lange Zeitentwicklung der Felder zu modellieren. Es ist typisch für Simulationen in der Zeitdomäne: Erst wenn das Feld im Simulationsvolumen nahezu vollständig abgeklungen ist, kann die Auskoppeleffizienz anhand der auf einer Fläche integrierten Intensität berechnet werden.

Als Nächstes wurde der Durchmesser von 100 nm bis 2 μm in 100 nm-Schritten variiert. Hierbei ergab sich ein optimaler Durchmesser von ca. 1 μm. In der Abbildung 3.14 sind die Ergebnisse der beiden Variationen der Position und des Durchmessers der ersten Schicht dargestellt. Der Übersichtlichkeit halber werden jeweils nur fünf Simulationsdurchläufe gezeigt. Analog wurde mit der zweiten und dritten Apertur verfahren. Zuletzt musste die optimale Dicke der GaAs-Deckschicht gefunden werden. Sie wurde analog in 10 nm-Schritten verschoben und modelliert.

Das Ergebnis und der Vergleich mit der simulierten adiabatischen 10°-Öffnung der Aperturen und der ursprünglichen RCLED-Struktur sind in Abbildung 3.14 (c) zu finden. Durch die freie Variation der Position und des Durchmessers der drei Aperturen konnte die in eine NA=0,5 ausgekoppelte Intensität um 90 % gegenüber der RCLED verbessert werden. Die Halbwertsbreite vergrößerte sich um 63 %.

Der vorgestellte Einsatz von mehreren Aperturen verdoppelt nahezu die Auskoppeleffizienz verglichen mit einer RCLED bei gleichzeitiger Vergrößerung

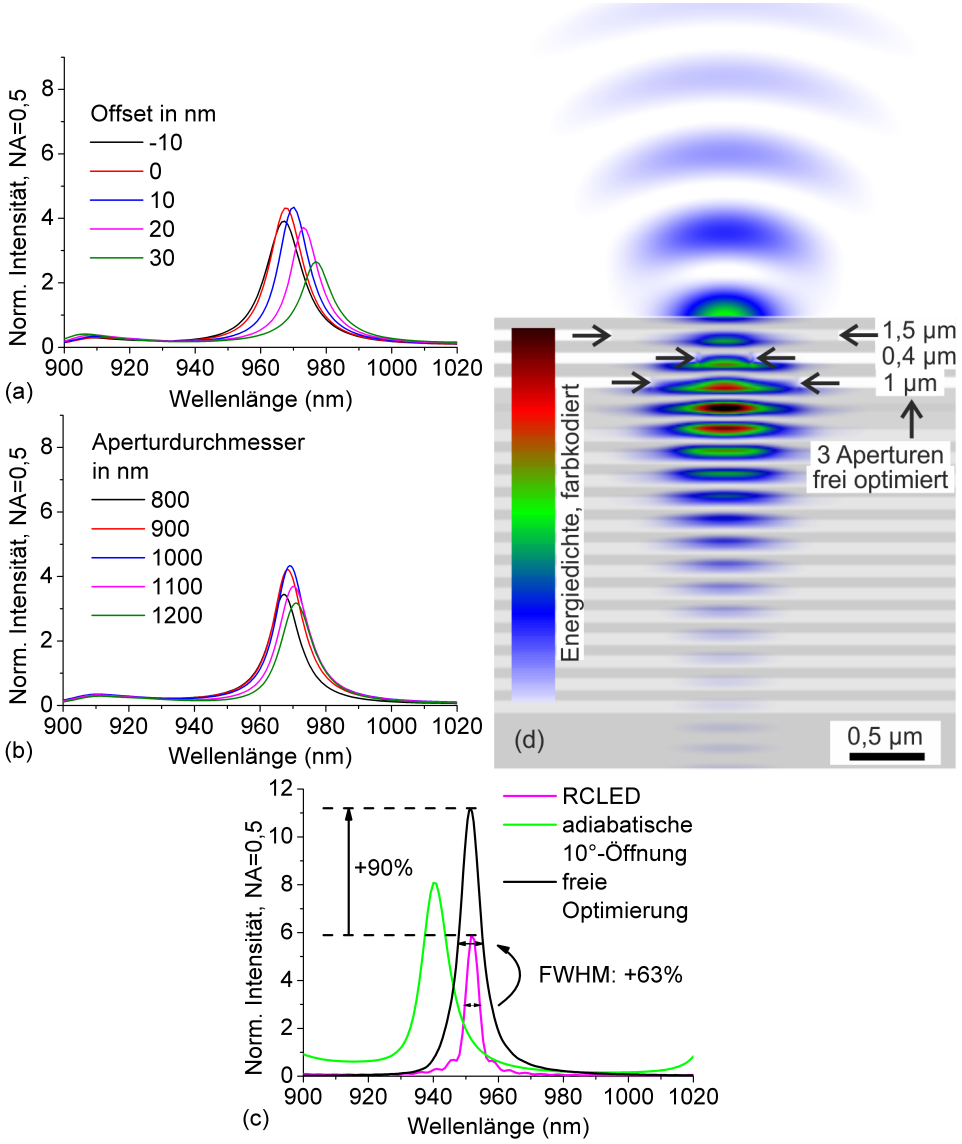


Abbildung 3.14: Simulationen zur Bestimmung der optimalen Position und des optimalen Durchmessers von drei Aperturen. Mit den gefundenen Durchmessern von 1 μm, 0,4 μm und 1,5 μm und Abständen von ca. $\lambda/4$ weist die Struktur eine Steigerung der Auskoppeleffizienz und der Halbwertsbreite der verstärkten Mode von 90 % resp. 63 % gegenüber der RCLED auf, bei gleichzeitiger Verringerung der Bauelementhöhe. Unter (a) ist exemplarisch die Variation der Position der ersten Apertur gezeigt. Die Position mit der höchsten ausgekoppelten Intensität wird in die nächste Simulation (b) übernommen. Unter (b) wird die Bestimmung des optimalen Durchmessers durchgeführt. Analog wird mit der zweiten und der dritten Apertur sowie der Dicke der Kappschicht verfahren. Die dabei gefundene Struktur ist in (d) abgebildet. Im Gegensatz zu Abbildungen 3.12 und 3.13 ist nicht die anfängliche Ausbreitung der Energiedichte, sondern die Grundmode der Struktur dargestellt. Die Stärke des Feldes außerhalb der Struktur wurde zur Sichtbarmachung um Faktor 20 erhöht. Unter (c) sind die normierten Intensitäten der ursprünglichen RCLED, der adiabatischen 10°-Öffnung (s. Abschnitt 3.5.4) und der freien Optimierung zusammengefasst.

der Halbwertsbreite der genutzten Grundmode. Die technische Realisierbarkeit von mehreren oxidierten Aperturen wird bereits seit Längerem in VCSEL-Strukturen demonstriert [64]. Hierbei wurden primär nicht die optischen, sondern die elektrischen Eigenschaften verbessert. Damit ließ sich die parasitäre Kapazität eines VCSELs reduzieren. Die Implementierung mehrerer Aperturen ist eine einfache und elegante Methode zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz. Sie kann auch in einem hybriden Ansatz mit oberem DBR-Spiegel und/oder mit Mikrolinsen eingesetzt werden.

4 Wachstum und Herstellung elektrisch kontaktierbarer Bauelemente

Der entscheidende Vorteil elektrisch betriebener Einzelphotonenemitter auf dem Weg zum kommerziellen Einsatz liegt unter Anderem in einer einfachen Integration in elektronische Schaltkreise, Miniaturisierung und Kosteneffizienz, verglichen z. B. mit optisch angeregten Einzelphotonenemittern. Dies diente gleichzeitig als Motivation und Richtungsweisung. Ein signifikanter Teil der vorliegender Arbeit befasste sich mit dem Design und der Herstellung von elektrisch betriebenen Bauelementen zur Einzelphotonenemission und der technologischen Neu- und Weiterentwicklung der Herstellungsprozesse. In diesem Kapitel wird der technologische Aspekt der Arbeit dargestellt. Zunächst sind die verwendeten Wachstumsverfahren zur Schichtstrukturherstellung und Wachstumsarten von Monolagen auf einer Phasengrenze im Speziellen zur Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte zu erwähnen. Auf die Besonderheiten der Schichtstrukturen einer RCLED oder des Ansatzes zur verspannungsinduzierten Positionierung von Quantenpunkten wird eingegangen. Anschließend wird die Prozesstechnologie der Bauelementherstellung beschrieben, die sich aus einer Vielzahl einzelner technologischer Schritte zusammensetzt. Das Misslingen eines einzelnen Schrittes führt zu einem defekten Bauelement. Je mehr fehlerhafte Schritte, desto höher ist die Ausfallquote, bis hin zum Komplettversagen aller Bauelemente auf einem Wafer. Größte Sorgfalt bei der Herstellung und fehlertolerantes Design und Technologie müssen befolgt und entwickelt werden, um das Gelingen des Gesamtprozesses sicherzustellen .

4.1 Verwendete Wachstumsverfahren zur Schichtstrukturherstellung

Teile der in dieser Arbeit verwendeten Schichtstrukturen entstanden aus einer Kollaboration mit der Arbeitsgruppe von Prof. V. A. Haisler (Novosibirsk State Technical University). Weitere Strukturen, insbesondere die zur verspannungsinduzierten Positionierung von Quantenpunkten, wurden innerhalb der Arbeitsgruppe von J.-H. Schulze hergestellt. Die Arbeitsgruppe von Prof. Haisler benutzte das Molekularstrahlepitaxie-Verfahren (molecular beam epitaxy, MBE), die ersten RCLED-Strukturen wurden in der Anlage Riber-32P gewachsen. J.-H. Schulze setzte metallorganische Gasphasenepitaxie (metal organic chemical vapor phase epitaxy, MOVPE) zur Schichtherstellung ein.

4.1.1 Molekularstrahlepitaxie

Molekularstrahlepitaxie ist ein Verfahren zur physikalischen Gasphasenabscheidung dünner, homo- und heteroepitaktischer Schichten. In der Halbleitertechnik wird es überwiegend zur Herstellung binärer und ternärer III-V- und II-VI-Verbindungen eingesetzt, wie beispielsweise GaAs, InGaAs, AlGaAs, Indiumphosphid (InP), Galliumnitrid (GaN), Galliumantimonid (GaSb) und weiteren. Dabei können sehr scharfe Grenzflächen zwischen einzelnen Schichten erzeugt werden, die Schichten selbst können zwischen wenigen Atomlagen bis zu Mikrometern variiert werden. Die genaue Kontrolle der Schichtdicke machte das Wachstum von Quantengräben und Quantenpunkten möglich.

Im Ultrahochvakuum eines MBE-Reaktors werden die sehr reinen Ausgangsstoffe elementar oder als Verbindung in Effusionszellen verdampft und gelangen als gerichteter Molekularstrahl auf ein beheiztes Substrat. Das Substrat kann rotiert werden, um die laterale Homogenität zu verbessern. Hier findet eine Wechselwirkung der Ausgangsstoffe mit der Wachstumsoberfläche und untereinander statt, die zur Kondensation und geordnetem Wachstum einer Schicht führt. Mit Hilfe nichtinvasiver *In-situ*-Messverfahren wie Ellipsometrie oder Elektronenbeugung bei Reflexion kann der Wachstumsprozess kontrolliert werden. Die Reinheit der Ausgangsstoffe und der erreichbare Unterdruck sind entscheidend für die Vermeidung unerwünschter Verunreinigungen. Unter epitaktischen Verfahren erlaubt die Molekularstrahlepitaxie die Herstellung von Schichten mit der höchsten Reinheit.

4.1.2 Metallorganische Gasphasenepitaxie

Das in der Arbeitsgruppe verwendete Epitaxieverfahren ist eine Unterart der metallorganischen chemischen Gasphasenabscheidung (metal-organic chemical vapour deposition oder metallo-organic chemical vapour deposition, MOCVD), die epitaktisches Wachstum erlaubt. Die metallorganische Gasphasenepitaxie (metalorganic vapour phase epitaxy, MOVPE) bedient sich im Gegensatz zur MBE einer chemischen Reaktion. Diese findet in einer verdünnten Atmosphäre von mehreren metallorganischen Präkursoren wie z. B. Trimethylgallium und Arsin bei einem Druck zwischen 10 mbar und 1000 mbar statt. Man leitet die Präkursoren in die Kammer mit dem zu beschichtenden Substrat. In der beheizten Kammer laufen komplexe Wechselwirkungen zwischen Gasphasenreaktionen und Oberflächenreaktionen ab. Durch Adsorption wird die Oberfläche mit Reaktionsprodukten der Gasphase benetzt. Anschließend zersetzen sich die organischen Reaktionsprodukte thermisch auf dem beheizten Substrat und die gewünschten chemischen Elemente verteilen sich auf der Waferoberfläche. Oberflächendiffusionsprozesse führen dazu, dass Atome energetisch günstige Positionen annehmen, was zum Wachstum insbesondere an Kinkpositionen von Stufen führt. Dadurch erreicht man epitaktisches Monolagenwachstum, auf der Oberfläche bildet sich eine feste einkristalline Schicht aus. Nach der pyrolytischen Zersetzung desorbieren die gasförmigen Reaktionsprodukte und werden

zusammen mit nicht an der Reaktion beteiligten Präkursoren abgepumpt.

Vorteilhaft gegenüber MBE-Verfahren sind höhere Wachstumsraten von 0,1 nm/s bis 1 nm/s aufgrund von höheren Substrattemperaturen und damit der Reaktionskinetik. Die Größe der Anlage ist prinzipiell nicht beschränkt, damit eignet sich diese Methode zur Massenproduktion. Der aktuell größte kommerziell verfügbare Reaktor CRIUS II-L der Firma AIXTRON fasst neunundsechzig 2″-Wafer. Nachteile des Verfahrens sind die geringe Materialeffizienz, teils sehr giftige Ausgangsstoffe und Abfälle aber auch geringere Reinheit der aufgewachsenen Schichten aufgrund von unerwünschten Nebenreaktionen oder vorhandenen Verunreinigungen in den Metallorganika.

4.2 Herstellung eines Mikroresonators

Zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz, Abstrahlcharakteristik und Verringerung der Exziton-Lebensdauer kann ein Quantenpunkt in einen Resonator eingesetzt werden. Der Einfluss des Resonators wurde in den Abschnitten 2.5 und 3.5.3 erläutert.

Ein linearer Mikroresonator in einer Mesenstruktur entsteht durch Einfügen eines oberen und unteren dielektrischen Bragg-Spiegels um die aktive Zone mit Quantenpunkten. Ein Bragg-Spiegel ist eine alternierende Folge von $\lambda/4$-Schichten mit variierendem Brechungsindex. Jede Grenzschicht einer derartigen Schichtfolge verursacht eine Teilreflexion, die um so höher ausfällt, je höher der Brechzahlkontrast

$$\frac{n_2 - n_1}{n_2 + n_1} \tag{4.1}$$

zwischen den beiden Medien 1 und 2 ist. Die in die Schicht 2 transmittierte Welle, die an der nächsten Grenzschicht reflektiert wird und wieder die erste Grenzschicht erreicht, erfährt aufgrund der zurückgelegten Strecke einen Phasengangunterschied von $\lambda/2 \equiv \pi$ und interferiert mit der ersten Teilreflexion. Berücksichtigt man den Phasensprung von π einer reflektierten Welle, der bei Reflexion an einem Medium mit höherem Brechungsindex stattfindet, so ist die Interferenz bei $\lambda/4$-Schichten stets konstruktiv und die Gesamtreflektivität steigt mit jedem Spiegelpaar. Ein derart konzipierter Spiegel hat eine maximale Reflektivität bei der Wellenlänge λ, die auch als Mittenwellenlänge bezeichnet wird. Für die Reflektivität gilt:

$$R = \left[\frac{n_0(n_2)^{2N} - n_s(n_1)^{2N}}{n_0(n_2)^{2N} + n_s(n_1)^{2N}}\right]^2 . \tag{4.2}$$

Dabei sind n_0, n_1, n_2 und n_s die Brechzahlen des Umgebungsmediums, der ersten und zweiten Schicht und des Substrats. N ist die Anzahl der Spiegelpaare.

Die zweite wichtige Eigenschaft eines dielektrischen Spiegels ist seine Halbwertsbreite, denn verglichen mit einem Metallspiegel reflektiert dieser nur in

einem schmalen Spektralbereich. Für die Halbwertsbreite $\Delta\lambda$ um die Mittenwellenlänge λ gilt:

$$\Delta\lambda = \frac{4\lambda}{\pi} arcsin \left| \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right| . \tag{4.3}$$

Sowohl die Reflektivität als auch die Breite des Stoppbandes profitieren von einem hohen Brechungsindexkontrast. Im AlGaAs-System ist dieser mit $n_{GaAs}(965\,nm) = 3{,}5$ und $n_{AlAs}(965\,nm) = 3{,}0$ relativ klein, so dass mehr Spiegelpaare notwendig sind, um ausreichende Reflektivität zu erreichen. Die in dieser Arbeit verwendeten Schichtstrukturen mit vorpositionierten Quantenpunkten hatten 20 $Al_{0,92}Ga_{0,08}As/GaAs$-Spiegelpaare.

4.3 Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte

Das epitaktische Wachstum von Monolagen auf einer Phasengrenze ist ein komplexer Prozess, der mit Hilfe von mehreren vereinfachten Grenzfallmodellen approximiert werden kann. Die Differenzierung der Wachstumsmodi geschieht anhand der sich beim Wachsen ausbildenden Topologie der Oberfläche, die unter Anderem von der Gitterfehlanpassung des Substrats und der aufzubringenden Schicht abhängt.

Generell gilt, dass eine Reaktion dann stattfindet, wenn die Gibbs-Energie des Systems dabei abnimmt. Bei der Oberflächenchemie des Monolagenwachstums betrachtet man die Summe der Energien der Oberflächen, der Grenzfläche und der durch die Gitterfehlanpassung induzierten Verspannung. Ist es energetisch günstiger, die Substratoberfläche zu benetzen, so findet das Kristallwachstum Monolage für Monolage statt. Eine neue Atomlage entsteht erst dann, wenn die vorhergehende abgeschlossen ist (siehe Spalte (a) in Abb. 4.1). Die Summe aus freier Oberflächenenergie des Adsorbats E_2 und der Grenzflächenenergie E_{12} ist dabei kleiner als die freie Oberflächenenergie E_1 des Substrates, $E_2 + E_{12} < E_1$. Dieser Grenzfall wird als Frank-van-der-Merwe-Wachstumsmodus [65] bezeichnet und wird in der Homoepitaxie und bei minimalem Unterschied der Gitterkonstanten in der Heteroepitaxie beobachtet, z. B. AlGaAs auf GaAs.

Im Gegensatz dazu gibt es Materialpaare, bei denen die Summe $E_2 + E_{12}$ größer ist als die freie Oberflächenenergie E_1. Aufgrund hoher Beweglichkeit der Atome auf der Oberfläche und stärkerer Wechselwirkung zwischen benachbarten Adsorbatatomen verglichen mit Substrat-Adsorbat-Wechselwirkung findet in diesem Fall reines Inselwachstum statt. Bei weiterer Materialzufuhr wachsen die Inseln und bilden schließlich eine geschlossene Schicht. Diesen Grenzfall nennt man Volmer-Weber-Wachstumsmodus [66]. Er ist in Abb. 4.1 Spalte (c) dargestellt.

Bei heteroepitaktischem Wachstum von Materialien, die eine Gitterfehlanpassung zum Substrat aufweisen, führt das Auftreten der Verspannung zu einem neuen Wachstumsmodus. Das Abscheiden der ersten Monolage führt

zu einer vollflächigen atomaren Benetzungsschicht. Das anfängliche Wachstum ist pseudomorph, die Benetzungsschicht passt sich der Gitterkonstante des Substrats an und wird vom diesem verspannt. Pseudomorphes Wachstum ist nur bis zu einer kritischen Schichtdicke möglich. Nachfolgende Monolagen erhöhen die Verspannung derart, dass ein Inselwachstum energetisch günstiger wird. Ab einer materialspezifischen Schichtdicke findet also ein Wechsel des Wachstumsmodus statt. Diese Dicke hängt von der Verspannung und dem chemischen Potential des abgeschiedenen Materials ab. Derartiges Wachstum wird als Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus [67] bezeichnet und kann exemplarisch bei Deposition von InAs auf GaAs beobachtet werden [23, 68]. Der schematische Wachstumsverlauf ist in Abbildung 4.1 Spalte (b) dargestellt.

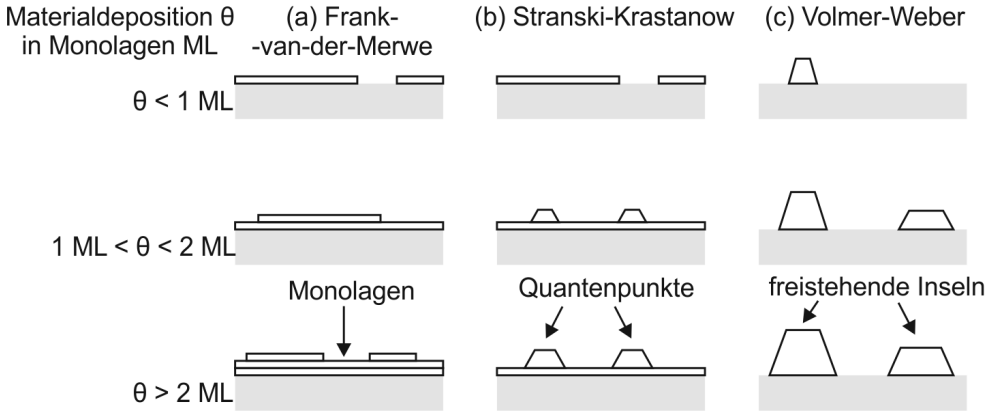


Abbildung 4.1: Verschiedene Wachstumsmodi des epitaktischen Wachstums von Monolagen. Der Wachstumsmodus ist abhängig von den Oberflächenenergien E_1 und E_2 des Substrates und des Adsorbats, von der Grenzflächenenergie E_{12} und der Gitterfehlanpassung. Frank-van-der-Merwe-Wachstumsmodus (a): Die Monolagen wachsen homogen Schicht für Schicht. Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus (b): Das Adsorbat bildet zunächst eine Benetzungsschicht, auf der sich Quantenpunkte ausbilden. Volmer-Weber-Wachstumsmodus (c): Das deponierte Material bildet freistehende Inseln auf der Substratoberfläche, bei weiterer Materialzugabe wachsen die Inseln.

Die Herstellung von selbstorganisierten Quantenpunkten geschieht in Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus. Der Prozess wird in drei Phasen unterteilt. In der ersten Phase nukleieren die Quantenpunkte auf der Benetzungsschicht und müssen eine kritische Größe überschreiten, damit die Wahrscheinlichkeit für ihre Wiederauflösung sinkt. Ihre Dichte auf der Oberfläche ist exponentiell abhängig von der Oberflächentemperatur. Bei höheren Temperaturen lösen sich mehr Nukleationskeime wieder auf und die Quantenpunktdichte sinkt. In der zweiten Phase agglomerieren die Keiminseln Material aus der Benetzungsschicht und werden größer. Die Dicke der Benetzungsschicht sinkt. Ihre Gleichgewichtsdicke ist abhängig vom Materialsystem und beträgt bei InAs auf einem GaAs-Substrat genau eine Monolage. In der letzten Phase reifen die

Quantenpunkte [69, 70]. Hierbei werden das Volumen, die Form und die Dichte der Quantenpunkte festgelegt [71]. In der Grundlagenforschung und auch für Anwendungen werden geringe Volumenverteilungen und definiertes Volumen angestrebt. Diese dritte Wachstumsphase ist also wesentlich für die Herstellung von Emittern homogener Größe und Materialverteilung und führt zu gleichartigen optischen Eigenschaften (s. Abschnitt 2.4.3). Die Reifungsprozesse sind vergleichbar mit der Ostwaldreifung, bei der größere Partikel aufgrund eines günstigeren Verhältnisses von Volumen zur Oberfläche bevorzugt werden. Der größere Dampfdruck kleinerer Keiminseln führt dazu, dass sich diese auflösen und das freiwerdende Material sich an größere Partikel anlagert.

Nachteilig beim Einsatz von selbstorganisierten Quantenpunkten in Einzelphotonenemittern ist deren lateral statistisches Wachstum auf der Probenoberfläche. Der selbstorganisierte Wachstumsprozess führt dazu, dass Quantenpunkte nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im durch Apertur begrenzten Strompfad liegen und elektrisch gepumpt werden können. Neben der notwendigen Gradation der Mesendurchmesser (s. Abschnitt 4.4.1), ist diese Zufälligkeit der zweite Faktor, der den Bauelementausschuss auf einem Wafer deutlich erhöht und langwierige Vorcharakterisierung und Selektion notwendig macht, um eine aktive Quelle mit gewünschten Eigenschaften zu finden. Ein weiterer bei RCLEDs hinzukommende Faktor ist die spektrale Übereinstimmung der Quantenpunktemission und der Resonatormode (s. Abschnitt 6.1). Ein Lösungsansatz hinsichtlich der unbekannten Quantenpunktposition ist eine deterministische Platzierung des Emitters bezüglich der Apertur. Bereits bekannte Techniken und ein neu entwickelter Ansatz werden im nächsten Abschnitt vorgestellt.

4.3.1 Quantenpunktwachstum auf vorstrukturiertem Substrat

Der Einfluss der Oberflächenverspannung auf den Wachstumsprozess kann zur Positionierung von Quantenpunkten gezielt ausgenutzt werden. Wie im Abschnitt 3.3.1 beschrieben, erzeugt man oberhalb der Apertur eine tensile mechanische Verspannung der GaAs-Oberfläche durch selektive Oxidation einer darunter liegenden AlAs-Schicht, welche nach der Oxidation um ca. 12 % bis 13 % schrumpft [72]. Die verringerte Gitterfehlanpassung hat eine bevorzugte Nukleation der Quantenpunkte an dieser Stelle zur Folge. Ist die Fläche klein genug, so nukleiert nur ein einzelner Quantenpunkt.

Prozesstechnologisch liegt die Besonderheit des Wachstums auf einem strukturierten Substrat in der zusätzlichen Präparation der Oberfläche vor dem Überwachsen. Nach der Strukturherstellung mittels Photoresist und Trockenätzverfahren muss die Oberfläche vorbehandelt werden, damit die Prozessverunreinigungen vollständig entfernt werden und ein epitaktisches Wachstum wieder möglich ist. Der sehr aggressive Prozess der Oxidation in einer Wasserdampfatmosphäre bei 420 °C zeigt hingegen keinen beobachtbaren Einfluss auf das nachfolgende Wachstum. Die Oberfläche wird primär nur durch schwer entfernbare Photoresist-Überreste verunreinigt. Diese stark quervernetzte Konglomerate

entstehen unter anderem nach Plasmaeinwirkung eines ICP-RIE-Verfahrens. Die Quervernetzung eines im Normaleinsatz nicht quervernetzenden Positivlacks (wie der verwendete AZ MiR 701) findet bei Temperaturen über 150 °C statt. Derart hohe Substrattemperaturen treten bei unzureichender Kühlleistung oder bei Prozessparametern außerhalb der Anlagenspezifikation auf. Auch die Einwirkung von UV-C unterhalb 250 nm Wellenlänge bei erhöhter Lacktemperatur oder Materialredeposition, die während eines ICP-RIE-Prozesses auftreten können, führen zu Rückständen, die nicht mit einem organischen Lösemittel wie z. B. Aceton entfernt werden können. Erst der kombinierte Einsatz von einem erwärmten NMP-Bad (1-Methyl-2-pyrrolidon) und Ultraschall-Behandlung brachten zufriedenstellende Resultate. Im folgenden Abschnitt 4.4 wird der Reinigungsprozess genauer beschrieben.

Vor dem Überwachsen wird das Substrat mit Aceton, Isopropanol und Reinstwasser gereinigt. Liegezeiten zwischen Oxidation und Wachstum, die länger als ein Tag andauern, sollten vermieden oder die Probe in einer inerten Stickstoffatmosphäre gelagert werden. Längere Lagerung führt zum Abplatzen der GaAs-Kappschicht nach dem Aufheizen des Substrats (s. Abb. 4.10 auf S. 85). Das Überwachsen beginnt mit Desorption von Oxiden auf der Oberfläche bei 720 °C und Arsin-Zugabe. Als nächstes deponiert man bei 685 °C eine ca. 50 nm dicke GaAs-Pufferschicht. Die Wachstumsparameter des Quantenpunktwachstums unterscheiden sich kaum vom Wachstum auf planarem Substrat, so dass dieser als erste Kalibration dient. Feineinstellung gewinnt man an Referenzproben. Die InGaAs-Quantenpunktschicht und die GaAs-Kappschicht werden bei 485 °C gewachsen. Bis auf die Dicke der Quantenpunktschicht stimmen die übrigen Parameter mit dem Quantenpunktwachstum in Laserstrukturen überein. Die Dicke liegt nahe dem 2D/3D-Übergang, um die Dichte der Quantenpunkte zu verringern. Eine detaillierte Darstellung ist in der Referenz [73] zu finden.

4.4 Prozesstechnologie

Die Entwicklung eines Bauelements ist ein Kompromiss zwischen einem optimalen Design und der technologischen Machbarkeit. Die einerseits notwendige Miniaturisierung mit einhergehenden positiven Eigenschaften wie Hochfrequenztauglichkeit, kleineres Modenvolumen oder höhere Packungsdichte wird durch die zur Verfügung stehende Prozesstechnologie, ihre Stabilität, Reproduzierbarkeit und damit verbundener Ausbeute begrenzt.

Für die Defektfreiheit der Bauelemente war es notwendig, die Strukturierung der Substrate in einem Reinraum durchzuführen. Insgesamt wurden vier verschiedene Prozesse benutzt: trockenchemische Ätzung, Beschichtung mit Dielektrika, selektive Oxidation und Metallisierung. Die Strukturdefinition geschah mit optisch aktiven Positiv- und Negativlacken und mehreren Sätzen von Lithographiemasken, die für verschiedene Einsatzszenarien entwickelt wurden (s. Abschnitt 3.3.2). Nachfolgend werden die verwendeten Herstellungsverfahren vorgestellt.

4.4.1 Prozessfluss einer Resonant Cavity LED

Die Strukturierung eines Substrats mit beiden Kontakten auf der Epitaxieseite und selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten in der aktiven Zone unterscheidet sich signifikant in ihren Prozessschritten von einem Einzelphotonenemitter mit Rückseitenkontakt und überwachsener Oxidapertur. Die Kontaktierung auf der Wachstumsoberfläche verspricht Hochfrequenztauglichkeit, welche durch höheren Prozessaufwand erkauft wird. Für die ersten RCLED-Serien zur Untersuchung des Einflusses des Gütefaktors eines Resonators auf die Emissionseigenschaften der Quantenpunkte wie Zerfallszeit und elektrooptische Konversionseffizienz wurde ein alter Maskensatz mit beiden p- und n-Kontakten auf der Epitaxieseite verwendet.

Die in einer MBE aufgewachsene AlGaAs-Schichtstruktur bildet eine pin-Diode. Im intrinsischen Bereich der Diode liegt eine InAs-Schicht mit selbstorganisierten Quantenpunkten. Ihre nominelle, aus der Depositionsrate und -zeit berechnete Dicke beträgt ca. 2 nm. Die laterale Quantenpunktdichte liegt bei ca. $10^9\,cm^{-2}$. Im darüber liegenden p-dotierten Bereich befindet sich eine AlAs-Schicht, die später oxidiert wird und als eine elektrische Apertur zur lateralen Eingrenzung des Strompfades dienen soll, damit im Idealfall nur ein einzelner Quantenpunkt gepumpt wird. Als Nächstes folgt der obere DBR-Spiegel mit 5, 7 oder 9 $Al_{0,9}Ga_{0,1}As/GaAs$-Spiegelpaaren. Die abschließende $GaAs$-Kappschicht ist mit $10^{19}\,cm^{-3}$ hoch dotiert und dient als p-Kontaktschicht. Unterhalb des intrinsischen Bereichs liegt der n-dotierte untere DBR-Spiegel mit 12 oder 13 Spiegelpaaren mit gleicher Aluminiumkomposition wie im oberen DBR. Insgesamt gab es drei Wafer folgender Spiegelzusammensetzung: 5/12, 7/13 und 9/13.

In der Abbildung 4.2 ist der Herstellungsprozess einer RCLED schematisch dargestellt. Der Wafer wird bei Schritt (0) gereinigt, elektrostatisch haftende Partikel können mit Stickstoff oder in einem Ultraschallbad entfernt werden. Anschließend entfernt man organische Verunreinigungen in einem Aceton-Bad für ca. 3 Minuten. Aceton verdampft nicht rückstandsfrei und muss in einem Isopropanol-Bad gelöst werden. Der Isopropanol-Reinigungsschritt dauert wieder ca. 3 Minuten. Das die Oberfläche benetzende Isopropanol wird mit Stickstoff weggeblasen. Bis auf die Ultraschallbehandlung kann die Reinigung beliebig oft durchgeführt werden, um den gewünschten Oberflächenzustand herzustellen. Ultraschalleinwirkung im späteren Stadium der Prozessierung kann die Bauelemente oder sogar den ganzen Wafer beschädigen. Insbesondere die verspannte Oxidschicht ist gegenüber mechanischen Einwirkungen instabil.

Im ersten Prozessschritt (1) wird die p-Metallisierung aufgebracht. Dazu trägt man zunächst einen UV-empfindlichen negativen Lack auf. Dieser wird mit entsprechender Maske im Hartkontaktmodus belichtet und anschließend entwickelt. Die Lithographie dient zur temporären Passivierung der Oberfläche vor dem folgenden Prozessschritt wie z. B. Ätzung oder Metallisierung und wird im Abschnitt 4.4.3 näher erläutert. Im Prozessschritt (1) wird der p-Kontakt

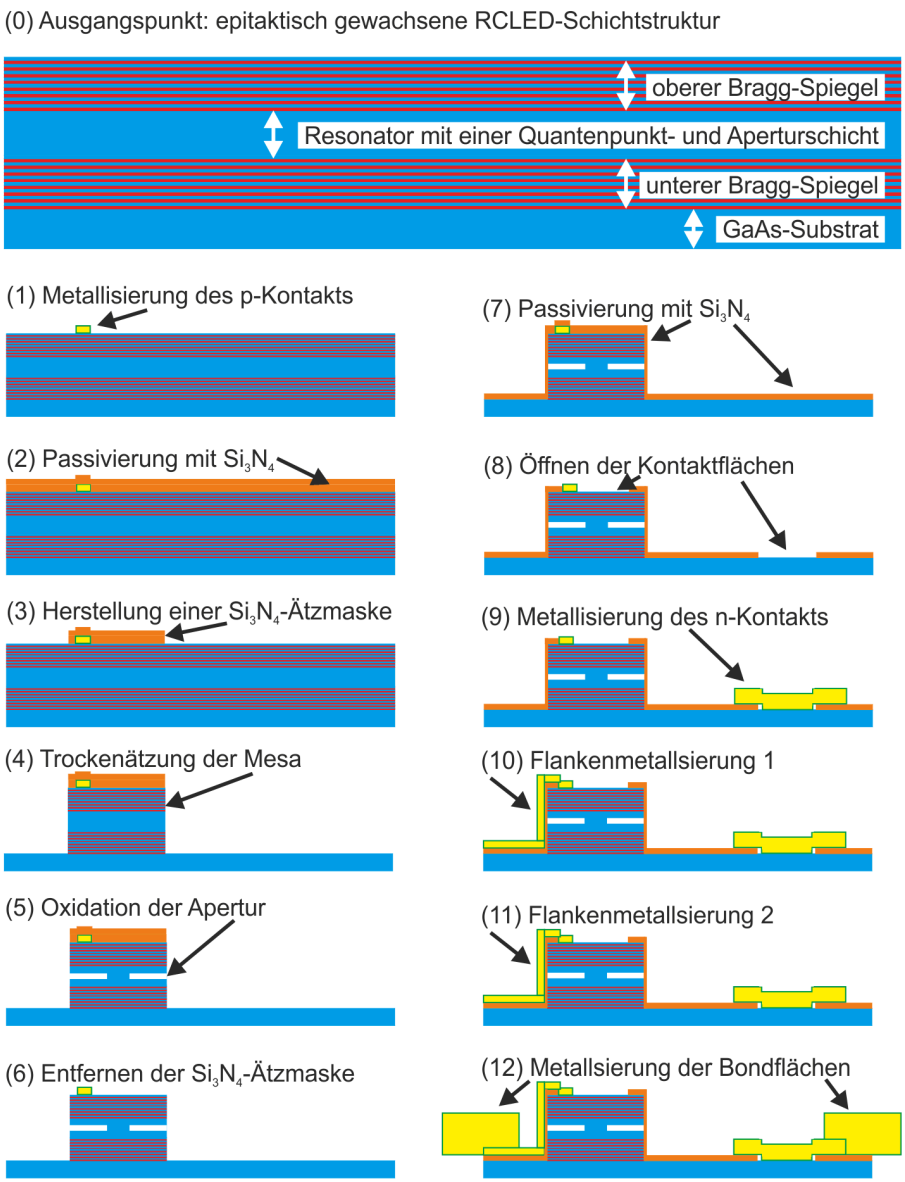


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des ursprünglich in der Arbeitsgruppe etablierten Herstellungsprozesses einer RCLED. Die Prozesszeit für die Bauelementherstellung nach diesem Schema beträgt 4 bis 6 Wochen. Negativ hervorzuheben sind der auf der Waferoberfläche liegende n-Kontakt (9) und die notwendige doppelte Metallisierung (10) und (11) der Mesenflanken (s. Abb. 4.3). Die Herstellung des n-Kontaktes auf der Oberfläche und nicht auf der Rückseite wie bei dem neuen Herstellungsprozess im Abschnitt 4.4.2 verlangt sowohl einen zusätzlichen Lithographieschritt (9) als auch deutlich höhere Ätztiefe der Mesa (4). Derartige Ätztiefen lassen sich wiederum nur durch eine Si_3N_4-Hartmaske und zusätzliche Schritte (2), (3) und (6) zuverlässig erreichen. Der neue Herstellungsprozess löst diese Probleme und ist deutlich schneller, einfacher und zuverlässiger.

mittels Elektronenstrahl-Ofen zunächst vollflächig aufgebracht. Während des folgenden lift-off löst sich das Metall überall dort, wo es auf Lack aufgedampft wurde, auf den in der Lithographie freigelegten Halbleiterflächen bleibt das Metall haften. Der Metallisierungsprozess wird im Abschnitt 4.4.7 beschrieben.

In Teilschritten (2) und (3) stellt man eine Ätzmaske für die spätere Plasmaätzung (4) der Mesen mittels ICP RIE her. Jede Probe soll 10 Bauelemente mit Mesendurchmessern von 34 μbis 43 μm in 1 μm Schritten beinhalten (s. Abb. 3.6 auf Seite 41). Damit lässt sich auch bei ungenauer Kontrolle des Oxidationsprozesses stets eine Mesa mit einem Aperturdurchmesser kleiner oder gleich 1 μm finden. Aufgrund der Schichthöhe, die hauptsächlich durch die beiden DBR-Spiegel verursacht wird, liegt die benötigte Ätztiefe bei ca. 4 μm. Wie im Abschnitt 4.4.3 beschrieben, hängt die Auflösung der Lithographie unter anderem von der Dicke des Lacks ab, so dass möglichst dünne Lacke für die Auflösung der 1 μm Schritte der Mesensequenz eines Probe benötigt werden. Andererseits begrenzt der physikalische Abtrag die minimale Dicke einer Maske, denn bei einem RIE-Prozess existiert neben der chemischen Ätzkomponente stets ein physikalisches Sputtern, welches die Maske angreift. Zielführend ist hierbei die Verwendung einer Siliziumnitrid-Hartmaske (s. Abb. 4.13). Dazu wird die Probe im Schritt (2) vollflächig mit Si_3N_4 passiviert. Mittels Lithographie stellt man eine Lackmaske für das Ätzen von Si_3N_4 her und definiert anschließend mittels RIE-Prozess (3) die Hartmaske. Danach wird die Lackmaske mit einem Remover entfernt.

Im Schritt (4) werden in einer ICP RIE-Anlage die Mesen geätzt. Dabei muss die gesamte übrige Schichtstruktur weggeätzt werden, um die n-dotierte Kontaktschicht für spätere Metallisierung freizulegen. Die Aperturschicht an den Seitenflächen der Mesa ist jetzt zugänglich und kann oxidiert werden (5). Der Oxidationsprozess ist im Abschnitt 4.4.5 beschrieben. Die bereits aufgebrachte p-Metallisierung wird während der Oxidation getempert und einlegiert, was den Widerstand des Kontakts deutlich verringert [74]. Danach wird die Si_3N_4-Hartmaske mittels eines RIE-Prozesses entfernt (6).

In diesem Stadium ist das Bauelement bis auf die elektrische Kontaktierung vollständig. Um diese herzustellen, müssen p- und n-Kontakte angebracht und voneinander isoliert werden. Dazu passiviert man die Oberfläche zum zweiten Mal mit Si_3N_4 (7). Die Stabilität des Prozesses ist entscheidend, denn diesmal gibt es auch senkrechte Seitenflanken, die beschichtet werden müssen. Auf der Si_3N_4-Isolationsschicht wird mittels Lithographieschritt eine Lackmaske mit Öffnungen für Kontaktflächen aufgebracht. Der darauf folgende RIE-Ätzprozess (8) entfernt hier das Si_3N_4 und legt die Halbleiterkontaktflächen frei.

Bei der anschließenden n-Metallisierung (9) und insbesondere Herstellung der Zuleitung zur Mesaoberfläche (10) und (11) muss die Probe in der Metallaufdampfanlage schräg eingebaut werden. Der Metallisierungsprozess findet im Hochvakuum statt und ist ein hochgradig anisotroper Prozess, bei dem parallel zur Richtung der Evaporation liegende Flächen nicht metallisiert werden können. Zur Überbrückung von Stufen wird die Probe schräg bedampft. Die

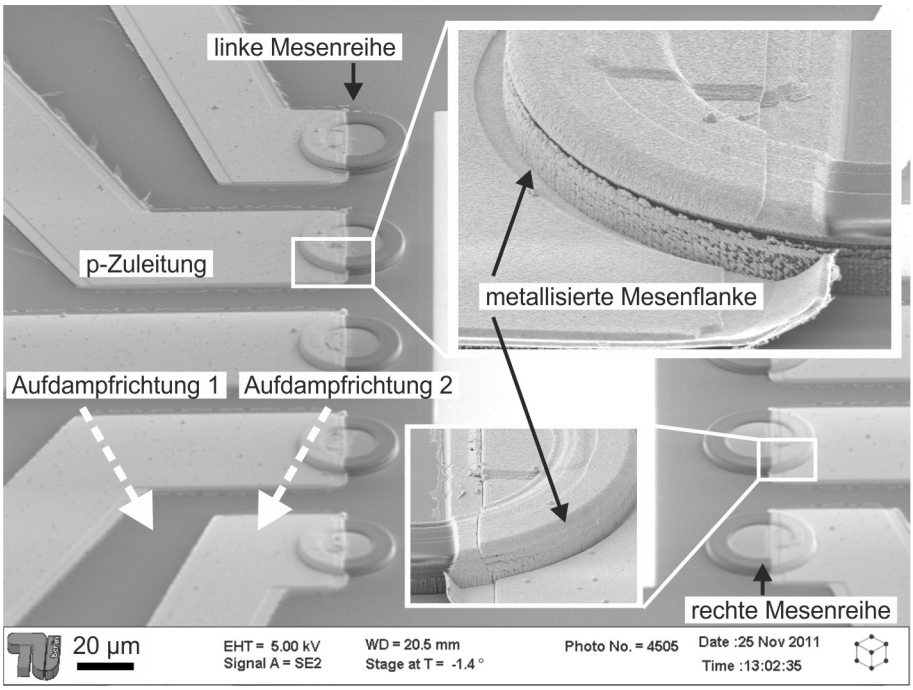


Abbildung 4.3: Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme der Mesen einer Einheitszelle nach der Metallisierung der Zuleitungen zu den Mesenoberflächen. Vergrößert dargestellt sind die metallisierten Mesenflanken einer Mesa aus der linken und einer aus der rechten Mesenreihe. Zum Überbrücken der Höhendifferenz muss die Probe schräg aus zwei unterschiedlichen Richtungen aufgedampft werden. Das verringert die Zuverlässigkeit des Prozesses und verdoppelt den Prozessaufwand. Die Lösung des Problems wurde im neuen Layout implementiert (s. Abschnitt 3.3.2)

Abbildung 4.3 zeigt eine REM-Aufnahme des Zentrums einer Einheitszelle. Zur Metallisierung der Mesenflanken der linken und der rechten Mesenreihe musste das Metall aus zwei unterschiedlichen Richtungen aufgedampft werden. Damit verdoppelt sich der Aufwand und die Zuverlässigkeit des Prozesses wird verringert. Bei dem neuen Herstellungsprozess in Abschnitt 4.4.2 ist eine doppelte Metallisierung aufgrund eines neuen Bauelementlayouts nicht mehr notwendig.

Zuletzt metallisiert man die Bondflächen mit einer Goldschicht (12). Ihre Adhäsion und Dicke sind für ein späteres Ultraschallbonden von großer Bedeutung. Falls das Ultraschallbonden fehlschlägt oder nicht zur Verfügung steht, kann bei einer genügend großen Fläche der Bondpads auch manuell mit leitendem Zweikomponentenkleber kontaktiert werden. Manuell aufgebaute Bauelemente sind in Abb. 3.8 (a) und 4.4 (rechts) dargestellt. Als Aufbauen wird das mechanische Verbinden des Chips mit dem Träger und das elektrische Kontaktieren des Chips und der Lötflächen des Trägers mit Bonddrähten bezeichnet.

Die Bauelemente auf dem Wafer können nun elektrisch angesteuert werden und die ersten Strom-Spannungs-Kennlinien werden aufgenommen. Für die

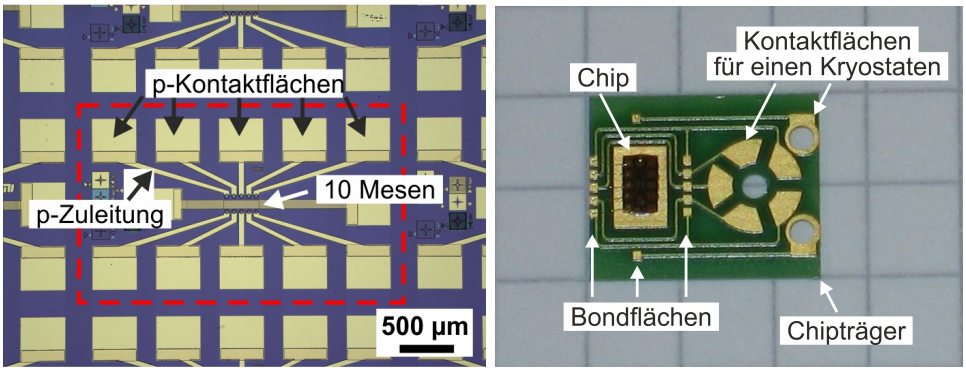


Abbildung 4.4: Links: Mikroskopaufnahme der Waferoberfläche nach dem Abschluss der Prozessierung. Angewandt wurde das alte Layout und der Herstellungsprozess für RCLEDs. In rot markiert ist eine Einheitszelle mit 10 Bauelementen. Ihre große Ausdehnung mit lang geführten p-Zuleitungen hat eine geringe Packungsdichte zur Folge. Zusätzlich verursachen die langen Zuleitungen und die großen Kontaktflächen parasitäre Induktivitäten und Kapazitäten. Das neue Layout in Abb. 4.6 hat keine Zuleitungen und deutlich kleinere Kontaktflächen. Rechts: Mit Hilfe eines Diamantritzers wird der Wafer zu Chips mit jeweils einer Einheitszelle vereinzelt und diese auf Trägern aufgebaut. Das rechte Foto zeigt eine gebondete Einheitszelle befestigt auf einem Chipträger.

Untersuchung der optischen Eigenschaften in einem He-Kryostaten muss der Wafer in einzelne Proben getrennt und diese auf Chipträgern aufgebaut werden. Hierzu wird der Wafer zunächst auf eine Dicke von 120 μm geschliffen und die Chips mit einer Ritzmaschine vereinzelt. Die einzelnen Chips klebt man auf die Chipträger und verbindet die Kontaktflächen mit einer Bondmaschine oder manuell. Die permanente elektrische Kontaktherstellung zwischen Chip und Chipträger wird auch als Bonden bezeichnet. In der linken Abbildung 4.4 ist eine Einheitszelle bzw. ein einzelner Chip auf dem Wafer markiert. Das rechte Foto zeigt einen Chip, der auf einem Träger aufgebaut ist. Für eine elektrische Kontaktierung des Chips innerhalb eines Kryostaten werden die Anschlussleitungen des Kryostaten mit den Kontaktflächen des Trägers verlötet.

Der vorgestellte Prozessfluss und das Maskenlayout wurden in dieser Arbeit für die Herstellung erster RCLEDs verwendet, um den Einfluss eines Resonators auf die optischen Eigenschaften der Bauelemente zu untersuchen. Es stellte sich heraus, dass das Layout deutliche Nachteile aufwies. Aus dem Wunsch heraus, Hochfrequenzdesign und manuelles Aufbauen der Chips zu vereinen, wurden $(400 \times 400)\,\mu\text{m}^2$ große Bondflächen mit langen Zuleitungen zu den RCLEDs entworfen (s. Abb. 3.6 auf S. 41), welche sehr hohe parasitäre Kapazitäten und Induktivitäten verursachen. Des Weiteren ist ein oberer n-Kontakt mit einem zusätzlichen Prozessaufwand verbunden. Der Vorteil seiner Nähe zur RCLED wird durch die parasitären Impedanzen zunichte gemacht. Die ersten Tests zur verspannungsinduzierten Nukleation von Quantenpunkten zeigten außerdem,

dass die im Maskensatz verwendete 1 μm Gradation des Durchmessers (s. z. B. Abb. 3.4 (rechts) auf S. 38) zu grob ist für eine ausreichende Kontrolle des Oxidationsprozesses. Diese Feststellungen sowie die Anschaffung eines Kryostaten mit GSG- und Nadelkontaktierung der Firma CryoVac veranlassten eine Neuentwicklung des Maskenlayouts und zusätzlicher Prozessschritte, die im nächsten Abschnitt vorgestellt werden.

Neben der Herstellung von RCLEDs diente der vorgestellte Prozess zur Untersuchung der Integration von positionierten Quantenpunkten, die auf einer mit Nanolöchern vorstrukturierten GaAs-Oberfläche entstehen, in eine LED-Struktur. Die mit Elektronenstrahllithographie hergestellten Löcher mit ca. 100 nm breite und 20 nm Tiefe werden in einer MBE-Anlage überwachsen. Auf der wenige Nanometer dicken Pufferschicht nukleieren Quantenpunkte bevorzugt über den Nanolöchern, was zur gezielten Positionierung eines Quantenpunktes innerhalb einer LED-Struktur ausgenutzt werden kann. Das Wachstum übernahm Dr. Paola Atkinson[1] in Dresden. Die Ergebnisse sind im Abschnitt 6.3 zusammengefasst.

4.4.2 Herstellungsprozess einer LED mit verspannungsinduziert positionierten Quantenpunkten

Wie im Abschnitt 3.3 erläutert, wurde in der Arbeitsgruppe ein neuartiges Positionierungsverfahren für Quantenpunkte entwickelt. Dabei nutzt man Verspannungsanomalien auf Mesenoberflächen aus, die aufgrund der Oxidation einer vergrabenen AlAs-Schicht entstehen. Für bestimmte Durchmesser der nicht oxidierten Apertur weist das Verspannungsprofil ein lokales Maximum der tensilen Verspannung auf, das das Wachstum von einem einzigen Quantenpunkt an dieser Stelle begünstigt. Prinzipbedingt schränkt die Apertur den Stromfluss lokal auf den vorpositionierten Quantenpunkt ein, was zu einer zusätzlichen Selektion des Quantenpunktes durch den Anregungsstrom führt. Der für diese neuartige Struktur entwickelte Prozessfluss ist auf eine schnelle und einfache Prototypenherstellung mit hoher Bauelementdichte ausgerichtet. Auf den oberen n-Kontakt wurde verzichtet und als n-Kontaktfläche die Rückseite des Wafers benutzt. Auch die langen Zuleitungen zu den p-Kontakten sind nicht mehr notwendig (s. Abb. 3.8 (b) auf S. 43).

Um eine für die Bauelementherstellung geeignete Schichtstruktur herzustellen, fand das Wachstum in zwei Phasen in einer MOVPE-Anlage statt. Die Unterbrechung diente der Definition der Mesen und der Oxidation der Aperturen. In der ersten Wachstumsphase stellte man eine negativ dotierte Grundstruktur mit einem 20-fachen Bragg-Spiegel her. Dann wurde eine AlAs-Schicht zur Herstellung einer Oxidapertur und eine GaAs-Kappschicht erzeugt. Die Dicke der Kappschicht resultiert nicht ausschließlich aus den optischen Überlegungen: Tests haben gezeigt, dass bei einer Kappschicht von $\leq$20 nm sich neue Oxidationskanäle durch die Oberfläche bilden (s. Abb. 4.8). Auf der Grundstruktur

[1] Leibnitz-Institut für Festkörper und Werkstoffforschung Dresden, AG Prof. O. Schmidt

wurde mittels Trockenätzverfahren Mesen hergestellt und anschließend in einem *In-situ*-Oxidationsofen die AlAs-Schicht zu Aperturen oxidiert. Danach fand die zweite Wachstumsphase statt, in welcher der intrinsische und p-dotierte Bereich gewachsen wurden. Im intrinsischen Bereich fand das Wachstum von $In_{0,6}Ga_{0,4}As$-Quantenpunkten statt. Die nominelle Schichtdicke betrug 2,6 Monolagen. Planare Referenzproben wiesen eine Quantenpunktdichte von 3×10^8 pro Quadratzentimeter auf. Die abschließende p-dotierte GaAs-Schicht hatte eine Dicke von 86 nm.

In der Abbildung 4.5 ist der Herstellungsprozess einer LED mit vorpositionierten Quantenpunkten dargestellt. Der Prozessfluss ist dem einer RCLED-Herstellung ähnlich. Die Grundstruktur wird bei Schritt (0) analog zur RCLED-Herstellung je nach Bedarf gespalten, gereinigt und für Herstellung der Mesen vorbereitet. Im nächsten Schritt (1) wird mittels UV-Lithographie eine Lackmaske zum Ätzen der Mesen hergestellt und die Mesen geätzt. Im Gegensatz zu einem auf der Oberfläche liegenden n-Kontakt ist das Durchätzen aller Spiegelpaare bis zur darunterliegenden hoch n-dotierten Schicht nicht notwendig, weil der n-Kontakt auf der Rückseite hergestellt wird. Es muss lediglich die AlAs-Schicht für die anschließende Oxidation freigelegt werden, was bereits ab ca. 220 nm Ätztiefe der Fall ist. Hier werden mehrere Vorteile eines Rückseitenkontakts deutlich:

- Verringerter Aufwand für eine schnellere Prototypenherstellung, denn es wird weder eine strukturierte Si_3N_4-Hartmaske, noch ein strukturierter n-Kontakt benötigt.
- Für die zweite Wachstumsphase ist eine für die Epitaxie geeignete Oberfläche insbesondere auf den Oberflächen der Mesen notwendig. Im Gegensatz zu einer Lackmaske hätte eine Si_3N_4-Hartmaske in einem Plasmaätzer entfernt werden müssen. Trotz Selektivität greift das Verfahren GaAs-Oberflächen an und würde die zu überwachsende Oberflächen beschädigen.
- Die Lackart und Lackdicke ist nicht mehr durch die große Ätztiefe vorgegeben, sondern kann nun für höhere Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der Gradation der Mesendurchmesser ausgelegt werden.
- Es müssen nicht mehr jeweils zwei Zuleitungen und Kontaktflächen für eine LED auf der Waferoberfläche platziert werden, was eine deutlich höhere Packungsdichte der Bauelemente erlaubt.
- Eine deutlich flacher ausgeprägte Topografie der Oberfläche, was vorteilhaft bei Si_3N_4-Passivierung und Metallisierung der Seitenflanken der Mesen ist.

Aufgrund der später folgenden zweiten Wachstumsphase können keine Metalle vor diesem Schritt auf den Wafer aufgebracht werden. Sie würden den MOVPE-Reaktor verunreinigen.

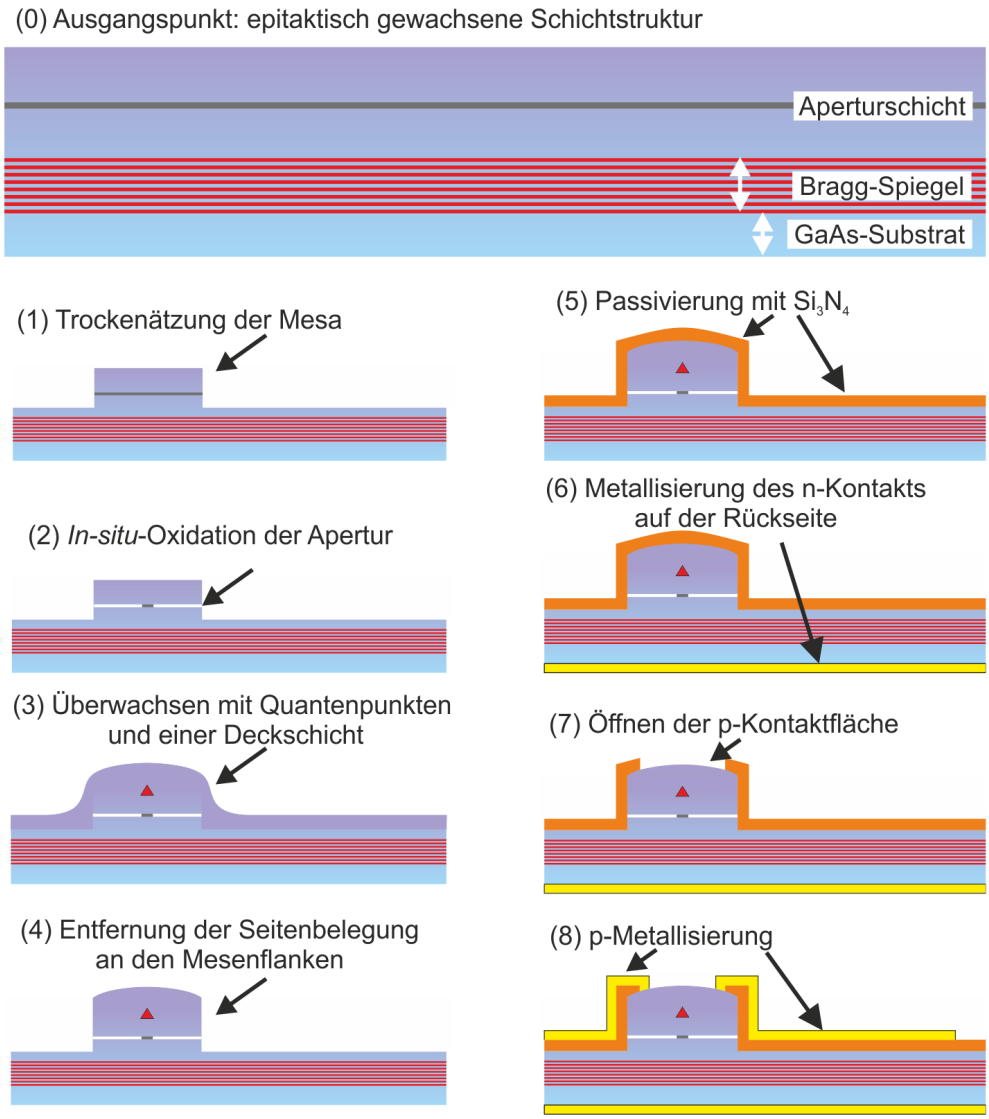


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung des neuen Herstellungsprozesses zur Anfertigung einer LED mit vorpositionierten Quantenpunkten. Die Prozesszeit für die Bauelementherstellung nach diesem Schema beträgt 2 bis 3 Wochen. Der neue Prozessfluss ist schneller als der in Abschnitt 4.4.1 vorgestellte, weil mehrere Prozessschritte nicht mehr notwendig sind und weitere Prozessschritte vereinfacht wurden. Der n-Kontakt liegt nun auf der Rückseite des Wafers (6). Zu seiner Herstellung ist kein Lithographieschritt mehr notwendig. Auch die Metallisierungen der p-Kontakte, der Zuleitungen und der Bondflächen finden alle in einem Prozessschritt (8) statt. Die notwendige Ätztiefe liegt nicht mehr bei 3 μm bis 4 μm, sondern unter 300 nm und kann auch mit einer Lackmaske erreicht werden. Die genannten Verbesserungen führen zu einer höheren Zuverlässigkeit des Gesamtprozesses.

Nach der Definition der Mesa in einer ICP RIE-Anlage (1) wird die Lackmaske entfernt. Dieser Schritt ist kritisch für die nachfolgende Wachstumsphase. Nach dem Entfernen des verwendeten Positivlacks AZ MiR 701 konnten mehrmals seine Überreste auf Mesenoberflächen unter einem Mikroskop festgestellt werden. Doch auch Verunreinigungen in der Größenordnung von wenigen zehn Nanometer, die in einem Mikroskop nicht sichtbar sind, stören das Wachstum. Für epitaktisches Wachstum auf einer strukturierten Oberfläche muss diese rückstandsfrei hergestellt werden. Hierzu wurde ein Verfahren entwickelt, bei dem die Probe zunächst in ein 100 °C-heißes NMP-Bad für fünf Minuten getaucht und mehrmals geschwenkt wird. Alternativ kann mit einem Rührfisch eine kontinuierliche Strömung im NMP-Bad erzeugt werden, welche die nicht löslichen Lackreste wegschwemmt. Danach legt man die Probe in eine zweite mit NMP gefüllte Schale, die sich in einem Ultraschallbecken befindet. Nach einer 5 bis 7 minütigen Ultraschallbehandlung wird in einem dreiminütigen Aceton- und Isopropanolbad das NMP vom Wafer entfernt.

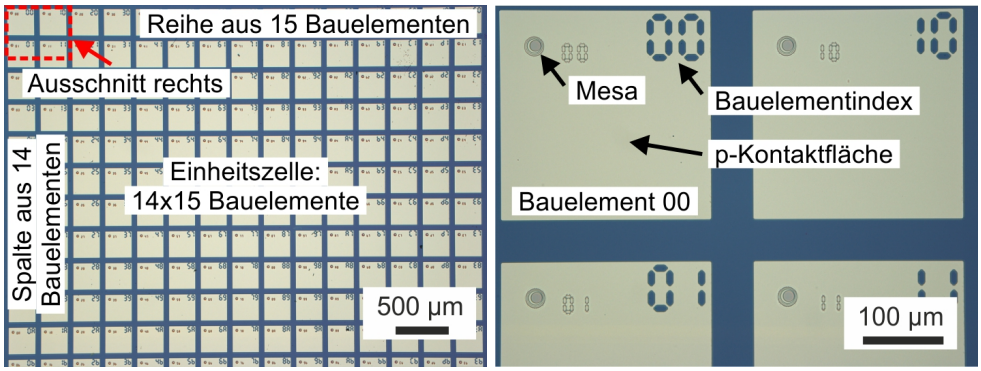


Abbildung 4.6: Mikroskopaufnahmen der Waferoberfläche nach dem Abschluss der Prozessierung. Angewandt wurde der neue Herstellungsprozess und das Layout für verspannungsinduziert vorpositionierte Quantenpunkte. Die linke Abbildung zeigt einen Ausschnitt der Einheitszelle, welche aus $14 \times 15 = 210$ Bauelementen besteht. In rot markiert ist die rechts abgebildete Vergrößerung mit vier Bauelementen. Gegenüber dem alten Layout in Abb. 4.4 links wurde die Packungsdichte um 638% gesteigert. Das Fehlen von Zuleitungen und die kleineren Kontaktflächen reduzieren parasitäre Induktivitäten und Kapazitäten und verbessern die Hochfrequenzeigenschaften der Bauelemente.

Im Prozessschritt (2) wird die AlAs-Schicht in einem *In-situ*-Oxidationsofen oxidiert. Die Einheitszelle besteht aus 210 Mesen, deren Durchmesser sich von 22 μm zu 24,8 μm verändert. In der Abbildung 4.6 sind zwei Ausschnitte der Einheitszelle bei verschiedener Vergrößerung aufgenommen. Eine Einheitszelle besteht aus 14 Zeilen und 15 Spalten. In einer Spalte haben alle Mesen den gleichen Durchmesser, in der nächsten Spalte nach rechts sind die Durchmesser 200 nm größer. Dadurch sollen trotz Inhomogenität und begrenzter Auflösung der *In-situ*-Messoptik Mesen mit gewünschtem Durchmesser hergestellt werden.

Jede Diode hat einen hexadezimalen xy-Index, der ein Mal während der ersten Mesendefinition und das zweite Mal bei der p-Metallisierung (8) aufgeprägt wird.

Nach der Oxidation beginnt die zweite Wachstumsphase (3) in der MOVPE-Anlage. Es wird der intrinsische Bereich mit InGaAs-Quantenpunkten und abschließende p-dotierte Kontaktschicht aufgebracht. Materialdeposition an Seitenflanken der Mesen erlaubt neue Stromflusspfade, die mit dem Stromfluss durch die Apertur konkurrieren. Dies wird im nächsten Schritt unterbunden. Eine zweite Mesendefinition (4) mit einem $3\,\mu$m kleineren Durchmesser entfernt die unerwünschte Seitenbelegung. Die Verringerung des Durchmessers ist hauptsächlich der unweigerlichen Ungenauigkeit der Justage des Benutzers am Belichter geschuldet.

Im Prozessschritt (5) isoliert man die Oberfläche mit Si_3N_4 gegen den später aufzubringenden p-Kontakt (8). Da die Oberfläche nun mechanisch robust versiegelt ist, kann der n-Rückseitenkontakt aufgebracht werden. Zusätzlich zur Siliziumnitridschicht wird die Oberfläche mit einem möglichst dicken strukturlosen Lack bedeckt, um die Oberfläche zusätzlich zu schützen. Danach wird die Probe mit der geschützten Seite auf dem Waferhalter der Metallaufdampfanlage befestigt und die Rückseite metallisiert (6). Schließlich wird der Schutzlack entfernt.

Auf der Bauelementseite wird nun eine neue Lackschicht aufgebracht und mittels Lithographie runde Öffnungen auf Mesenoberflächen definiert. Mit einer RIE-Anlage öffnet man auf den Mesen die p-Kontaktflächen in der Si_3N_4-Schicht (7). Weiterer Lithographieschritt strukturiert eine neue Lackmaske für große quadratische p-Kontakte. Bei der Metallisierung der Kontakte (8) muss die Probe wieder schräg bedampft werden, da wieder die Seitenflanken überwunden werden müssen.

Als Nächstes können die Einheitszellen vereinzelt und auf Chipträgern aufgebaut werden. Mit einem Kryostaten mit GSG- und Nadelkontaktierung wäre es jedoch auch möglich, den gesamten Wafer sofort zu untersuchen. Für den Aufbau auf einem Träger wurde der in der Abbildung 4.4 rechts abgebildete Chipträger verwendet. Das Bonden der Chip- und Trägerkontaktflächen mit einem Ultraschallbonder war jedoch nicht möglich. Nach der Kontaktierung leiteten die Dioden keinen Strom mehr. Die Vermutung liegt nahe, dass die nicht oxidierte und verspannte Apertur durch mechanische Einwirkung wie Ultraschall oder Anpressen der Bondkanüle sich von der umgebenden Struktur gelöst hat. Manuelles Bonden mit leitendem Epoxidkleber ohne mechanische Einwirkung auf die Metalloberfläche verlief hingegen zufriedenstellend. Alle in dieser Arbeit gezeigten Experimente mit elektrisch betriebenen verspannungsinduziert positionierten Quantenpunkten wurden an manuell aufgebauten Proben durchgeführt.

Das Problem der mechanischen Instabilität der Bauelemente kann sowohl technologisch, als auch epitaktisch angegangen werden. Zum Einen ist es möglich, das Layout des p-Kontaktes unter Verschlechterung der Packungsdichte zu

ändern, um die verspannte Schicht und die mechanisch zu belastende Kontaktfläche möglichst weit voneinander zu entfernen. So zeigte das ursprüngliche Design mit langen Zuleitungen in Abbildung 4.4 keine Probleme nach Bonden mit Ultraschall. Zum Anderen wäre es denkbar, durch besonders gestaltete Umgebung der AlAs-Schicht wie z. B. dicke Al-Gradientenschichten, die Verspannung abzubauen. Es müsste dann untersucht werden, ob es sich kontraproduktiv auf verspannungsinduzierte Nukleation auswirkt.

4.4.3 Optische Lithographie

Optische Lithographieverfahren dienen zur Strukturierung einer temporären Lackschicht. Die danach geöffneten Lackbereiche sind dem Folgeprozess ausgesetzt, die belackte Oberfläche bleibt hingegen geschützt. Der Prozess beginnt mit dem Entfernen von adsorbiertem Wasser auf dem Wafer, indem man den Wafer ausheizt. Um die hydrophile Waferoberfläche für die hydrophoben Lacke haftbar zu machen und restlichen Wasserradikale zu entfernen, kann ein Haftvermittler wie HMDS aufgebracht werden. Für das Aufbringen der Haftvermittler oder Lacke wurde stets Schleuderbeschichtung auf einem drehbaren Teller mit Vakuumansaugung angewandt.

Für die Wahl der Belackungstechnik sind Parameter wie gewünschte Lackschichtdicke, Schichtdickenhomogenität und -rauigkeit zu berücksichtigen. Schleuderbeschichtung zeichnet sich durch besonders gute Homogenität der Lackschichtdicke aus, was sich positiv auf maß-treue Übertragung von kritischen Strukturen wie z. B. die im Durchmesser um 200 nm variierende Mesen auswirkt. Die erzielte Lackschichtdicke hängt ab von der Schleuderdrehzahl und Schleuderdauer, aber auch von Temperatur, relativer Luftfeuchte und Lösemittelkonzentration der Atmosphäre im Belacker, sowie vom entweichenden Restlösemittelanteil in der Lackschicht. Nachteilig ist das Verfahren bei nicht rotationssymmetrischen Substraten wegen der am Rand auftretenden Lackwülste. Sie können zur Verklebung des Substrats mit der Maske führen oder einen unerwünschten Abstand zur Maske hervorrufen. Daher sollte bei derartigen Wafern stets Randentlackung durchgeführt werden.

Nach dem Haftvermittler wird der Lack zur gewünschten Schichtdicke aufgeschleudert. Auf einer Heizplatte werden die Restlösemittelanteile weiter verringert. Dieser Schritt wird als Softbake bezeichnet. Die Zeitdauer und Temperatur sind abhängig vom Lack und sind den Datenblättern des Herstellers zu entnehmen. Der Wafer mit ausgehärtetem Lack wird in einem UV-Belichter durch eine Chrommaske auf Quarzsubstrat im Hartkontaktmodus belichtet und nach Bedarf einem weiteren Ausheizschritt unterzogen. Diese verbessert die Lackhaftung und baut mechanische Spannung in der Lackschicht ab. Die Belichtung innerhalb des spektralen Empfindlichkeitsbereichs verändert abhängig von der Strahlungsdosis die Löslichkeit des Lacks. In einer geeigneten Entwicklerlösung werden die löslichen Bereiche entfernt und übrig bleibt eine strukturierte Lackschicht. Die freigelegten Bereiche können mit einem Sauer-

Tabelle 4.1: Lacke und Entwickler zur lithographischen Vorstrukturierung der Oberfläche beim Herstellungsprozess einer LED mit vorpositionierten Quantenpunkten (s. Abb. 4.5). Um die Epitaxieseite während der Rückseitenmetallisierung (6) zu schützen, wurde zusätzlich ein möglichst dicker Lack, ma-N 490, aufgebracht. Eine Strukturierung war nicht notwendig, so dass der Entwicklungsschritt entfallen ist.

Prozessschritt	Bezeichnung	Typ	Dicke	Entwickler
Definition der Mesa (1)	AZ MiR 701	positiv	1 μm	AZ 326 MIF
Definition der Mesa (4)	AZ MiR 701	positiv	1 μm	AZ 326 MIF
Schutzschicht (6)	ma-N 490	negativ	9 μm	–
Öffnen der p-Kontakte (7)	ma-N 440	negativ	4 μm	ma-D 532S
p-Metallisierung (8)	ma-N 440	negativ	4 μm	ma-D 532S

stoffplasma von eventuell übrig gebliebenen Lackresten befreit werden und sind dem Folgeprozess wie z. B. Ätzung oder Metallisierung ausgesetzt.

Die in dieser Arbeit verwendeten Photolacke lassen sich in Positiv- und Negativlacke einteilen. Positivlacke haben ein positives bis senkrechtes Profil[2], hohen Erweichungspunkt, hohe thermische Stabilität und Auflösung. Sie werden für trockenchemisches Ätzen in den RIE- oder ICP RIE-Anlagen verwendet. Bei einem Positivlack wird der belichtete Bereich entfernt und die unbelichteten Flächen bleiben erhalten, während es bei Negativlacken umgekehrt ist. Sie quervernetzen beim zweiten Backschritt an belichteten Stellen und verbleiben auf dem Substrat. Negativlackprofile haben einen Unterschnitt der Lackkante, was im sog. Lift-off-Prozess nach Metallisierung ausgenutzt wird (s. Abschnitt 4.4.7). Weiteres positive Merkmal ist der hohe Erweichungspunkt aufgrund Quervernetzung, es verhindert das Zerfließen des Unterschnittprofils bei hohen Temperaturen, die während einer Metallisierung auftreten können. Die während des Herstellungsprozesses einer LED mit vorpositionierten Quantenpunkten verwendeten Lacke und Entwickler sind in der Tabelle 4.1 aufgelistet.

4.4.4 Plasmaätzverfahren

Plasmaätzen ist ein in der Halbleitertechnik verwendetes plasmaunterstütztes Trockenätzverfahren zur Strukturierung von Festkörperoberflächen. Zur Abkürzung wird die Abbreviatur RIE (engl. *reactive-ion etching*) verwendet. In einen Reaktor werden Edelgase und plasmareaktive Gase geleitet und durch ein Pumpensystem zusammen mit Reaktionsprodukten wieder abgesaugt Damit lässt sich eine definierte Atmosphäre mit konstantem Druck und Gasflüssen herstellen. Zur Plasmaerzeugung koppelt man hochfrequente elektromagnetische Strahlung mit Frequenzen im Bereich 10 MHz bis 1 GHz und einigen hundert Watt Leistung in den Reaktor ein und entreißt die Elektronen den

[2] Von einem positiven Profil spricht man, wenn sich das Lackprofil vom Substrat weg verjüngt. Wenn der Lack mit dem Abstand zum Substrat breiter wird, so ist sein Profil negativ.

Gasatomen durch Stoßionisationsprozesse. Im Gegensatz zu den Ionen können die Elektronen aufgrund ihrer geringeren Masse den Schwingungen des Feldes folgen und treffen sowohl auf das geerdete Reaktorgehäuse als auch auf die isolierte Elektrode, auf der auch der Wafer Platz findet. Die Elektrode lädt sich negativ auf und es baut sich ein konstantes elektrisches Feld auf, das die positiv geladenen Gasionen in Richtung des Wafers beschleunigt.

Der Ätzprozess beruht auf einer physikalischen und einer chemischen Komponente. Die beschleunigten Ionen treffen auf die Substratoberfläche und lösen durch mechanische Einwirkung die chemischen Bindungen der Atome auf der Oberfläche auf. Die durch Ionisation aktivierten Ionen des plasmareaktiven Gases reagieren mit den Oberflächenatomen des Substrats und bilden gasförmige Reaktionsprodukte, die durch ein Pumpensystem abgesaugt werden. Im Idealfall führt die physikalische Komponente nur zur Aktivierung der Oberfläche für den nachfolgenden chemischen Prozess und verursacht selbst keinen Abtrag der Oberfläche. Der Ionenbeschuss ist hoch anisotrop, somit findet die chemische Reaktion primär nur auf den dem Ionenbeschuss zugänglichen Oberflächen statt. Daher weist das Verfahren eine hohe Anisotropie im Materialabtrag auf. Reaktive Ionen, die in der Nähe der Oberfläche generiert oder durch Stöße verlangsamt wurden, lösen isotrope Ätzprozesse aus. Durch Variation der Anlagenparameter kann somit gezielt das Ätzprofil verändert werden. Weitere Vorteile sind gute Kontrollierbarkeit der Ätzrate und der Selektivität gegenüber Hart- oder Lackmasken.

Ein Nachteil des beschriebenen RIE-Verfahrens ist die Abhängigkeit der Plasmadichte und Beschleunigungsspannung von nur einem regelbaren Parameter, der eingekoppelten Hochfrequenzleistung. Eine eventuell gewünschte höhere Plasmadichte zur Steigerung des Abtrags geht mit höherer Beschleunigungsspannung einher, was den physikalischen Abtrag erhöht und die Selektivität des Prozesses gegenüber einer Hart- oder Lackmaske verschlechtert. Bei genügend hoher kinetischer Energie der auftreffenden Ionen kann das Substrat durch Ionenimplantation sogar beschädigt werden. Dieser Nachteil lässt sich mit einer unabhängig gesteuerten Plasmaerzeugung aufheben.

Ein derartiges Verfahren wird als ICP RIE-Verfahren (engl. *inductively coupled plasma reactive-ion etching*) bezeichnet. Ein in die Reaktorkammer eingebauter Induktor wird vom HF-Wechselstrom durchflossen und erzeugt in seinem Inneren ein wechselndes Magnetfeld. Bei gleichen Ausgangsparametern zeichnet sich das induktiv erzeugte Plasma durch eine höhere Elektronendichte im Wechselwirkungsvolumen (im Bereich $10^{15}\,\mathrm{cm}^{-3}$) aus. Im Gegensatz zur kapazitiven Erzeugung ist auch die Wechselwirkung der Induktoroberfläche mit dem reaktiven Plasma verringert. Über die eingekoppelte ICP-Leistung lässt sich die Plasmadichte unabhängig steuern. Die kapazitive Einkopplung des RIE-Aufbaus ist aber weiterhin aktiv und generiert sowohl die Beschleunigungsspannung als auch zusätzliche Ionisation des Gases.

Das RIE-Verfahren mit Prozessgasen Fluoroform (CHF_3) und Sauerstoff wurde für das anisotrope Ätzen von Siliziumnitrid verwendet. Die reaktiven

Fluor-Ionen verursachen das chemische Ätzen des Nitrids, der Sauerstoffanteil verhindert, dass der kohlenstoffhaltige Abtrag der Lackmaske zusammen mit Fluoroform als Polymer wieder auf der Oberfläche landet. Sowohl die Definition einer Hartmaske als auch das Öffnen von Kontaktflächen in der Si_3N_4-Schicht wurde mit diesem Verfahren durchgeführt.

Für die Trockenätzung von AlGaAs-Schichtstrukturen stand eine ICP RIE-Anlage mit Chlor, Bortrichlorid und Argon als Prozessgase zur Verfügung. Als Ätzmaske sind sowohl Si_3N_4-Hartmaske als auch Lackmaske geeignet. Einzig die zu erreichende Ätztiefe wie z. B. bis zu 4 μm bei RCLED-Strukturen stellt große Anforderungen an die Maskenstabilität und wird erst mit einer Hartmaske zufriedenstellend erfüllt. Die anschließende Rückstrukturierung der Hartmaske geschieht mit einem RIE-Verfahren, welches die Mesaoberfläche geringfügig beschädigt. Aus diesem Grund wurde beim Herstellungsprozess einer LED mit vorpositionierten Quantenpunkten auf eine Si_3N_4-Hartmaske verzichtet, denn die Oberfläche muss ein anschließendes epitaktisches Überwachsen erlauben. Die Verwendung eines Rückseitenkontakts hat zusätzlich zur Folge, dass die n-dotierte Kontaktschicht bei der Mesendefinition nicht freigelegt werden muss. Um die Aperturschicht freizulegen ist eine Ätztiefe von nur 220 nm notwendig. Das Entfernen einer Lackmaske ist deutlich unproblematischer und erhält den epitaktischen Zustand der Mesenoberflächen.

Die Herstellung von RCLEDs und LED-Strukturen mit vorpositionierten Quantenpunkten verlangt beim Ätzen von AlGaAs-Schichtstrukturen hohe Präzision der Ätztiefe. Bei RCLEDs war es notwendig, einen Testwafer mit identisch gestalteten Mesen, jedoch ohne den oberen DBR-Spiegel herzustellen. Er wurde für die Kalibration des Oxidationsprozesses verwendet und diente zur Feststellung der notwendigen Oxidationszeit. Der anfänglich verfügbare Oxidationsofen hatte keine Möglichkeit einer *In-situ*-Kontrolle des Oxidationsprozesses. Es stand nur die optische Kontrolle der Apertur unter einem Lichtmikroskop zur Verfügung. Dazu musste der obere DBR-Spiegel entfernt werden. Dies verlangte hohe Präzision, denn zwischen der Aperturschicht und dem letzten DBR-Paar gab es nur eine ca. 40 nm dicke Schicht, in der die Ätzung gestoppt werden musste. Der neue Oxidationsofen mit *In-situ*-Beobachtung des Oxidationsprozesses auf mehreren Wellenlängen im Infrarotbereich macht die Entfernung des oberen Spiegels überflüssig.

Auch bei den LED-Strukturen mit vorpositionierten Quantenpunkten war es notwendig, bei der Definition der ersten Mesa den Ätzprozess in einer bestimmten Schicht zu unterbrechen. Die durchgeführten Tests haben gezeigt, dass eine freiliegende aluminiumhaltige Schicht das anschließende epitaktische Wachstum in der zweiten Wachstumsphase stört. Deswegen musste der Ätzprozess in einer GaAs-Schicht enden. Bei den Strukturen mit vorpositionierten Quantenpunkten war diese Schicht mit ca. 120 nm etwas größer im Vergleich zu den 40 nm der RCLEDs, das Stoppen ohne Tests allein aus bekannter Ätzgeschwindigkeit und errechneter Ätzzeit wäre trotzdem zu ungenau.

Zur Kontrolle der Ätztiefe im ICP RIE-Prozess stand ein *In-situ*-Reflektometer

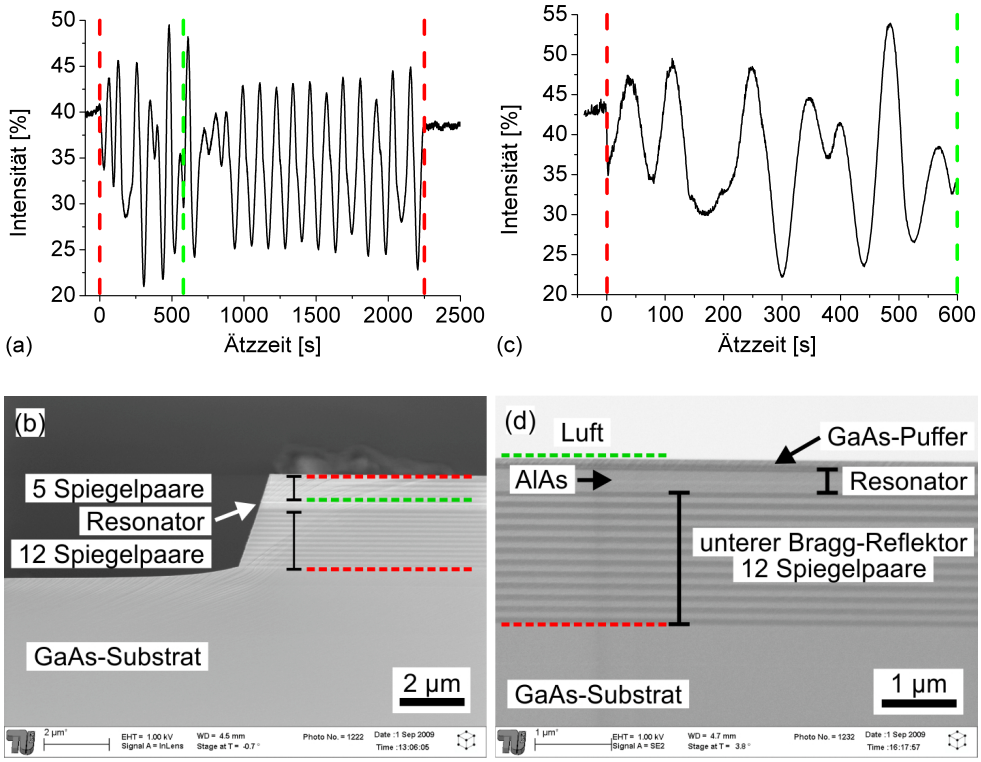


Abbildung 4.7: Zwei Ätzvorgänge an einer RCLED-Struktur mit 5 oberen und 12 unteren Bragg-Spiegelpaaren mit dem Ziel, den oberen Bragg-Reflektor für eine Testoxidation zu entfernen. (a) und (b): Ein Ätzvorgang durch die komplette Struktur. Ein Abgleich des während der Ätzung aufgenommenen Reflexionsprofils (a) mit der REM-Aufnahme der durchgeätzten Struktur (b) erlaubt eine genaue Zuordnung der Schichten zum Reflexionsprofil. Gestrichelte Linien in Rot markieren den Anfang und das Ende der epitaktisch gewachsenen Schichtstruktur. Die grüne gestrichelte Linie kennzeichnet das Ende des oberen Bragg-Reflektors. (c) und (d): Zweiter Ätzvorgang bis zur in den Reflexionsprofilen (a) und (c) grün markierten Stelle. Die anschließende REM-Aufnahme (d) der Spaltkante zeigt eine mit GaAs-Puffer abgedeckte AlAs-Aperturschicht, die später oxidiert wird. Darunter befindet sich die aktive Zone (nicht erkennbar) und der untere DBR-Spiegel. Die oberen fünf Spiegelpaare sind nicht mehr vorhanden.

zur Verfügung. Durch ein Fenster im Deckel des Reaktors wird ein Laserstrahl in die Kammer eingekoppelt und trifft den auf der Elektrode liegenden Wafer. Die ausgeleuchtete Stelle wird mit einer vergrößernden Kamera aufgenommen. Auf dem Kamerabild definiert man Flächen zur Auswertung der reflektierten Intensität, die sich mit dem Abtrag der Schichtstruktur ändert. Mit mehreren markierten Bereichen lässt sich sowohl der Abtrag des Substrats als auch der Maske verfolgen. Vorteil des Verfahrens ist die stets gleiche Ätztiefe unabhängig von der aktuellen Ätzrate der Anlage und dem gewählten Ätzrezept.

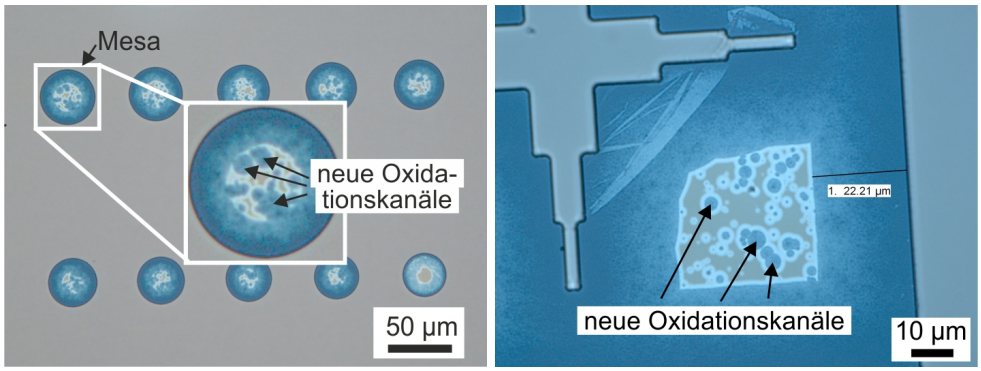


Abbildung 4.8: Mikroskopaufnahmen von zwei oxidierten Teststrukturen. Untersucht wurde die Stabilität der GaAs-Abdeckungen unterschiedlicher Dicke während eines Oxidationsprozesses. Gezeigt sind Strukturen mit 20 nm GaAs auf der aluminiumhaltigen Aperturschicht: links ein Mesenfeld aus zehn Mesen mit Durchmessern zwischen 34 μm und 43 μm, rechts eine Justiermarke mit einem großen nichtoxidierten Bereich. Die Abdeckung mit 20 nm erwies sich als instabil gegenüber dem Oxidationsprozess. Es entstanden zusätzliche Oxidationskanäle durch die GaAs-Deckschicht.

In der Abbildung 4.7 ist exemplarisch das Entfernen des oberen Bragg-Reflektors mit Hilfe des Reflektometers dargestellt. Das Entfernen ist notwendig, um Strukturen für Testoxidationen herzustellen. Ohne den oberen Spiegel lässt sich die erreichte Oxidationstiefe sehr einfach mit einem optischen Mikroskop bestimmen. In der Teilabbildung (a) ist das Reflexionsprofil einer RCLED-Schichtfolge mit 5 oberen und 12 unteren DBR-Paaren wiedergegeben, wie es während des Ätzvorgangs aufgenommen wurde. Diese Ätzung zusammen mit der darunter abgebildeten REM-Aufnahme der Spaltkante (b) und dem vorliegenden Wachstumsplan dient zur Feststellung der notwendigen Ätztiefe zum Entfernen des oberen Bragg-Spiegels. Gestrichelte Linien in Rot zeigen den Beginn und das Ende des Ätzvorgangs. Grüne gestrichelte Linie markiert die Position im Reflektionsprofil, an der beim zweiten Ätzvorgang gestoppt werden soll. Die nächste Ätzung (c) wird an der markierten Stelle im Reflexionsprofil gestoppt. Das REM-Bild (d) zeigt die Struktur ohne den oberen Bragg-Reflektor. Die zu oxidierende AlAs-Schicht ist immer noch durch eine restlichen Deckschicht geschützt.

Eine intakte Deckschicht definierter Dicke ist für den nachfolgenden Oxidationsprozess von besonderer Bedeutung. In Tests zum verspannungsinduziert vorpositionierten Wachstum von Quantenpunkten wurden unter Anderem die optimalen Dicken einer Deckschicht untersucht. Zum Einen führt eine zu starke Schicht zum Relaxieren der Verspannung auf der Wachstumsoberfläche, so dass positioniertes Wachstum nicht möglich ist. Zum Anderen erwies sich eine zu dünne Deckschicht als instabil gegenüber dem Oxidationsprozess. Die Abbildung 4.8 zeigt die Oxidation einer Teststruktur mit einer 20 nm dicken

Deckschicht. Deutlich sichtbar sind weitere, während des Oxidationsprozesses entstandene Oxidationskanäle durch die Oberflächen der Mesen und eines Markierungsfeldes. Strukturen mit einer 40 nm dicken Deckschicht blieben hingegen stabil.

4.4.5 Nasschemische selektive Oxidation von aluminiumhaltigen Schichten

Weltweit wurde lange nach einem geeigneten Oxid für III-V-Halbleiter gesucht, der ähnliche Eigenschaften aufweist wie das Siliziumdioxid in der Siliziumtechnologie. Alle gefundenen natürlichen Oxidschichten waren sowohl mechanisch als auch chemisch instabil [75]. Bei einer Untersuchung von Langzeiteffekten einer atmosphärischen Hydrolyse wurden AlAs-GaAs-Heterostrukturen erhitzt und einer Wasserdampfatmosphäre ausgesetzt [76]. Damit sollte eine Langzeitexposition der Strukturen einer Luftatmosphäre simuliert werden. Es stellte sich heraus, dass $Al_xGa_{1-x}As$-Schichten mit hohem Aluminiumanteil von x $\geq$ 0,7 ein Oxid bildeten, das mechanisch stabil war und stromisolierend wirkte. Die Abhängigkeit von der Aluminiumkonzentration wurde zur selektiven Oxidation gezielt platzierter Schichten ausgenutzt. Der niedrige Brechungsindex von ca. 1,6 erlaubte es, Bragg-Spiegel mit weniger Paaren und breiterem Stoppband herzustellen, oder bei einer nicht vollständiger Oxidation der Schicht in einer VCSEL-artigen Struktur als optische Wellenführung zu fungieren (s. Abschnitt 3.5). Die entdeckte selektive Oxidation aluminiumhaltiger Schichten in AlGaAs-Systemen beeinflusste in hohem Maße vor allem optoelektronische Bauelemente wie kantenemittierende Laser und VCSEL. Eine weitere bekannte Eigenschaft, die isotrope Volumenreduktion des Aluminiumoxids verglichen mit nichtoxidiertem AlGaAs, konnte vor kurzem zur gezielten Positionierung von Quantenpunkten ausgenutzt werden [44].

Der Oxidationsprozess findet in einem geheizten Ofen und unter mit Wasserdampf angereicherter Stickstoffatmosphäre statt. Die Anreicherung kann entweder durch Dampfdrucksättiger oder durch direkte Einleitung von heißem Wasserdampf über ein Massendurchflussregler hergestellt werden. Im Rahmen dieser Arbeit kamen beide Verfahren zum Einsatz.

Der am Anfang dieser Arbeit benutzte Oxidationsofen war ein durch Heizwendeln beheizter Standard-Rohrofen mit Quarzglas-Reaktor. Stickstoff als inertes Trägergas wurde durch einen Dampfdrucksättiger mit 95 °C heißem Wasser geleitet und mit Wasserdampf angereichert. Durch beheizte Zuleitungen gelangte das Dampfgemisch in die Reaktorkammer mit eingebauter Probe und durchströmte die Kammer laminar. Anschließend wurde das Trägergas der Abluft zugeführt, dabei kondensierte das Wasser in einer Kühlfalle. Dieser Aufbau wurde durch einen in der Arbeitsgruppe entwickelten *In-situ*-Oxidationsofen abgelöst. Er ermöglicht neben der *In-situ*-Beobachtung des Oxidationsprozesses auch Kontrolle von weiteren Prozessparametern wie Kammer- und Partialdrücke des Trägergases und Wasserdampfs. Dazu schließt man den Reaktor an

eine Vakuumpumpe mit Drosselklappe zur Regelung des Kammerdrucks. Die Partialdrücke werden über das Mischverhältnis des Trägergases und Wasserdampfes zueinander hergestellt, dies erreicht man über Massendurchflussregler in beiden Gasleitungen. Die Herstellung des Wasserdampfes geschieht über ein Heizelement vor dem Massendurchflussregler. Aufgrund eines zu geringen Arbeitsabstandes des *In-situ*-Mikroskops zur Substratoberfläche ist ein Heizen mit Heizwendeln nicht möglich. Das Substrat wird auf einer geregelten Heizplatte auf die gewünschte Temperatur gebracht. Ein außerhalb der Reaktorkammer befestigtes Mikroskop erlaubt eine direkte Beobachtung des Oxidationsprozesses durch ein Fenster im Deckel des Reaktors. Es stehen mehrere Lichtquellen mit unterschiedlichen Spektren zur Verfügung. Es ist möglich, die Oberfläche mit Weißlicht und mit Hochleistungsdioden mit Emissionswellenlängen von 850 nm und 980 nm auszuleuchten. Damit ist eine Prozessbeobachtung durch den oberen DBR-Spiegel selektiv an den Minima-Stellen des Stoppbandes möglich.

Der Prozessschritt Oxidation beginnt mit der Vorbereitung der Mesenflanken. Die Probe verweilt wenige Minuten in einer basischen Lösung, z. B. einem NaOH-haltigen Entwickler, um an der Luft entstandene Oxide der Aperturschicht zu entfernen. Es wurde beobachtet, dass eine mehrere Tage der Umgebungsluft ausgesetzte Probe bei der nasschemischen Oxidation unregelmäßige Oxidationskanten ausbildet. Das an der Luft gebildete Oxid ist für Wasserdampf undurchlässig und behindert damit die Diffusion von Wasserdampf.

Als Prozessumgebung im neuen Reaktor wird ein Systemdruck von 50 mbar benutzt. Das Mischungsverhältnis von Stickstoff zu Wasserdampf liegt bei 1:1. Nach den Parametereinstellungen wird der Ofen mehrere Minuten ohne Temperaturanstieg gefahren, um die Flüsse zu stabilisieren und den Rest des Luftsauerstoffs abzupumpen. Danach beginnt der Aufheizprozess. Vor dem Erreichen der Endtemperatur werden drei Zwischenwerte, 80 °C, 100 °C und 120 °C, jeweils für drei Minuten konstant gehalten. Dieser Schritt verbessert die Homogenität der Oxidationskanten. Danach wird die Probe auf die Prozesstemperatur von 420 °C gebracht. Die Oxidationszeit hängt ab von der Dicke der Aperturschicht, von der Aluminiumkonzentration und der Temperatur der Probe.

Die gewählten Parameter haben einen reaktionsbegrenzten Oxidationsprozess zur Folge. Reduziert man den Zufluss an Reaktanden bei gleichzeitiger Erhöhung der Prozesstemperatur, dann findet der Prozess diffusionsbegrenzt statt. Bei reaktionsbegrenzten Prozessen limitiert allein die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion, welche von der Kristallrichtung abhängig ist, die Oxidationszeit. Die Richtungsabhängigkeit verursacht typische rautenartige Form der Oxidationsfront. Im diffusionsbegrenzten Modus ist die Reaktionsgeschwindigkeit durch Nachschub von Wasserdampf zum Reaktionsort (Oxidationsfront) begrenzt. Die Isotropie des Oxidationsprozesses in diesem Modus führt zu einer Oxidationsfront, die die geätzte Grundstruktur nachbildet. Die beiden Prozess-Modi sind in der Abbildung 4.9 dargestellt.

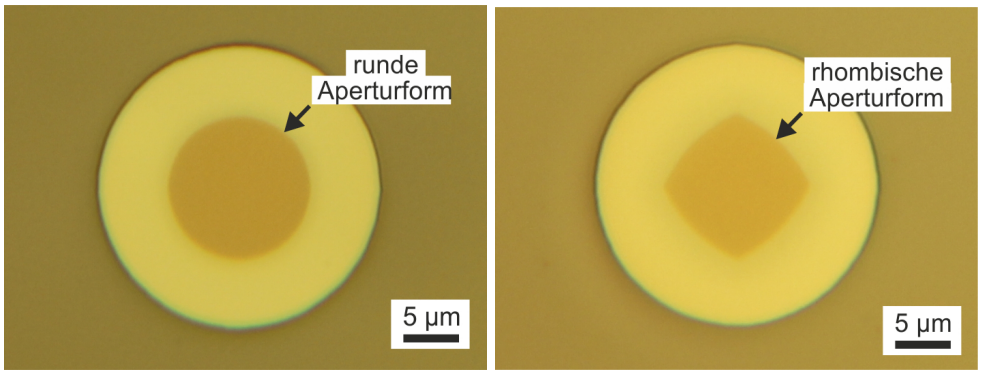


Abbildung 4.9: Der in der Arbeitsgruppe entwickelte *In-situ*-Oxidationsofen erlaubt eine genaue Steuerung der Reaktionskinetik des Oxidationsprozesses in einem großen Parameterbereich. Beide Grenzfälle eines diffusionsbegrenzten und eines reaktionsbegrenzten Prozesses konnten realisiert werden. Die linke Mikroskopaufnahme zeigt eine Mesa, die unter einem verringerten Angebot an Wasserdampf bei einer Temperatur von 550 °C oxidiert wurde. Die runde Aperturform ist eine Bestätigung für eine diffusionsbegrenzte Reaktionskinetik. Die Oxidation der Mesa in der rechten Mikroskopaufnahme fand bei Überangebot an Wasserdampf und 420 °C statt. Die Anisotropie der Aperturform wird von der Kristallrichtungsabhängigkeit des Oxidationsprozesses verursacht. Die rhombische Form ist ein Beweis für einen reaktionsbegrenzten Prozess.

Die nasschemische Oxidationsreaktion von Al(Ga)As mit Wasserdampf wird in zwei Teilreaktionen gegliedert. Zunächst wird das $AlAs$ zu Al_2O_3 umgesetzt, dabei entsteht Arsen(III)-oxid und Wasserstoff.

$$2AlAs + 6H_2O \longrightarrow Al_2O_3 + As_2O_3 + 6H_2 \qquad \Delta G = -473kJ/mol\,. \quad (4.4)$$

Der Wasserstoff ist wichtig für die zweiten Teilreaktion, er bildet mit dem Sauerstoff des Arsen(III)-oxids Wasser und das gasförmige Arsen. Das Wasser reagiert wieder mit $AlAs$ und das Arsen diffundiert aus der Schicht. Die beteiligten Reaktionen sind exergon, weisen also negative Veränderung der Gibbs-Energie auf.

$$As_2O_3 + 3H_2 \longrightarrow 2As + 3H_2O \qquad \Delta G = -131kJ/mol \quad (4.5)$$

$$As_2O_3 + 6H \longrightarrow 2As + 3H_2O \qquad \Delta G = -1226kJ/mol \quad (4.6)$$

Wichtig ist die Abwesenheit von Sauerstoff. Bei Verunreinigung der Reaktionsatmosphäre mit Sauerstoff würde der Wasserstoff zu Wasser gebunden werden und die Reduktion von Arsen(III)-oxid zum flüchtigen Arsen wäre nicht möglich. Das feste Oxid würde die Diffusion von Reaktanden behindern, bis die Reaktion zum Erliegen kommt. Eine ausführliche Beschreibung des Prozesses der selektiven Oxidation von Al(Ga)As kann der Publikation [77] entnommen werden.

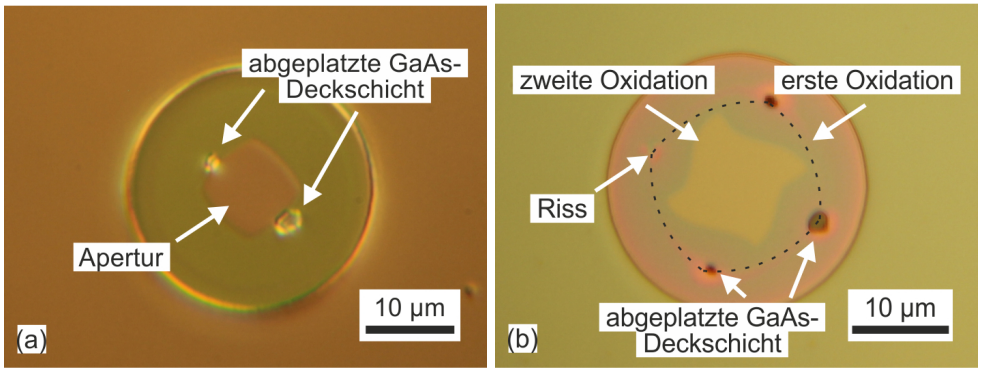


Abbildung 4.10: Für das verspannungsinduzierte Platzieren von Quantenpunkten ist die Stabilität der Mesaoberfläche in der zweiten Wachstumsphase von entscheidender Bedeutung. Das Aufheizen der Struktur in der MOVPE-Anlage kann zur Rissbildung oder zum Abplatzen der GaAs-Deckschicht führen. Die Mikroskopaufnahme (a) zeigt eine oxidierte Mesa, die in einer MOVPE-Anlage überwachsen wurde. Im Gegensatz zu anderen Proben lag dieses Teststück mehrere Tage an der Luft. Auf der Oberfläche sind Materialausbrüche an der Oxidationsfront sichtbar. In der Aufnahme (b) ist das Ergebnis eines Experiments zur Nachoxidation einer bereits oxidierten Mesa dargestellt. Die ursprüngliche rautenförmige Oxidationsfront des ersten Oxidationsprozesses ist mit einer schwarzen punktierten Linie markiert. Risse und tiefe Ausbrüche bis zur Aperturschicht entstanden symmetrisch in den Ecken der Raute. Diese Stellen hoher Verspannung werden auch bei der Quantenpunktnukleation bevorzugt (s. Abb. 3.5).

Umkristallisation von Aluminiumoxid während der Oxidation

Aufgrund der im Abschnitt 4.4.2 erwähnten Stabilitätsproblemen der Dioden bei mechanischer Belastung der Bondflächen sollte nicht nur die Stöchiometrie des Oxidationsprozesses, sondern auch die auftretende Umkristallisation des Aluminiumoxids berücksichtigt werden. Sie führt zur Volumenreduktion der oxidierten Schicht und verursacht damit eine mechanische Verspannung der Struktur. Darüber hinaus erhärten mehrere Beobachtungen den Verdacht, dass eine unter Wasserdampfatmosphäre oxidierte Schicht nicht immer stabil bleibt. Nach einem wiederholten Aufheizen bereits teiloxidierter und lang an der Luft gelagerter Proben sind Teile der GaAs-Deckschicht abgeplatzt. Dies geschah sowohl in der MOVPE-Anlage in der zweiten Wachstumsphase, als auch im Oxidationsofen während der Nachoxidation (s. Abb. 4.10). Lag die Probe jedoch nur wenige zehn Stunden an der Luft, oder befand sich bis auf die Transferzeiten ausschließlich in einer Stickstoff-Schutzatmosphäre, so blieb die Deckschicht beim Aufheizen stabil.

Gleiches Verhalten wurde an aufgebauten Bauelementen während Analyse in einem CL-Messaufbau beobachtet. Nach dem Abtasten der Diodenoberfläche mit einem Elektronenstrahl platzte bei länger gelagerten Dioden die GaAs-Deckschicht, die Lagerzeit war mit anderthalb Jahren allerdings deutlich länger.

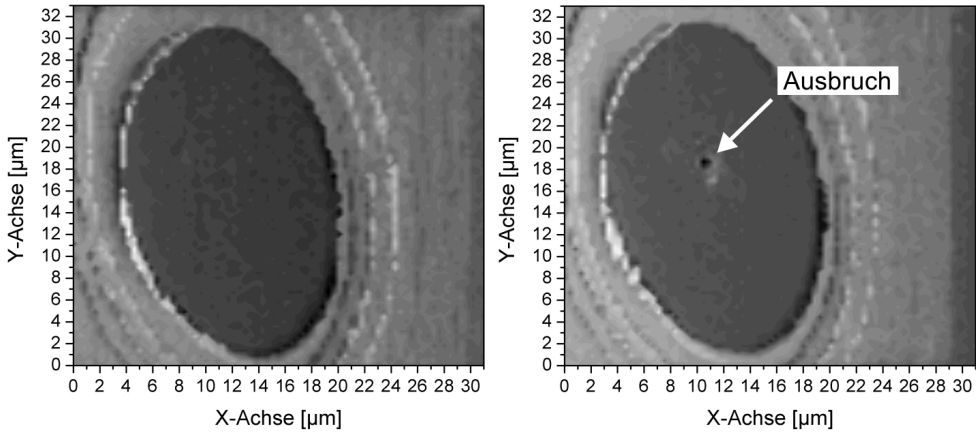


Abbildung 4.11: Zwei aufeinander folgende Aufnahmen einer Mesa mit einem Sekundärelektronen-REM. Die Probe liegt schräg unter einem Winkel von 45° zum Elektronenstrahl. Während der ersten fünf Abtastungen einer Messreihe blieb die Mesaoberfläche intakt. Die linke Abbildung zeigt die fünfte Aufnahme. Die sechste Abtastung in der rechten Abbildung zeigte eine mechanische Beschädigung der Oberfläche an der Stelle der Apertur. Weitere Dioden wurden bereits mit der ersten REM-Aufnahme zerstört.

Dies kann auf die passivierende Siliziumnitridschicht zurückgeführt werden, welche Gasdiffusion behindert. Dioden mit dreimonatiger Lagerung an Luft blieben im CL-Messaufbau mechanisch stabil.

In der Abbildung 4.11 sind zwei aufeinander folgende Aufnahmen einer Diode dargestellt. Sie entstanden in dem Sekundärelektronen-REM des CL-Messaufbaus. Während die ersten fünf Scans normal verliefen, zeigte der sechste Scan einen Materialausbruch in unmittelbarer Nähe zur Apertur auf. Die Lage der Apertur wurde durch gleichzeitige Aufnahme des CL-Spektrums eindeutig bestimmt. Andere untersuchten Dioden wurden bereits während des ersten Scans zerstört. Ihre Funktionstüchtigkeit war durch zuvor erfolgte elektrische Charakterisierung nachweislich vorhanden. Die Instabilität des Aperturbereichs unter Einwirkung des Elektronenstrahls ist nicht ausschließlich auf Diffusion der Umgebungsatmosphäre in den Aperturbereich während längerer Lagerung zurückzuführen. Wie weiter unten erläutert, bildet sich an der Oxidationsgrenze eine wenige Zehn Nanometer dicke Schicht, welche durch noch nicht zersetztes Intermediat As_2O_3 und Arsen geprägt ist und unter Elektronenmikroskop stabil bleibt. Eventuell ist es die langsame Diffusion dieser Stoffe in die Umgebung, die die Aperturumgebung für den Elektronenstrahl destabilisiert.

Diese Beobachtungen machen eine genauere Analyse des Oxidationsprozesses der Aperturschicht und ihrer Umgebung notwendig, um mögliche Wege zur mechanischen Stabilisierung der Deckschicht unter Erhalt der Oberflächenverspannung zur verspannungsinduzierten Positionierung von Quantenpunkten zu erarbeiten. Eine derartige Analyse würde den Rahmen vorliegender Arbeit

sprengen, an dieser Stelle erfolgt eine kurze Zusammenfassung bereits gesicherter Erkenntnisse über Oxidations- und Umkristallisationsprozesse in einer vergrabenen Al(Ga)As-Schicht während einer nasschemischen Oxidation.

An der dem Wasserdampf exponierten $Al_xGa_{1-x}As$-Grenzschicht beginnt die Oxidation unter der Bildung von amorphem $(Al_xGa_{1-x})_2\,O_3$. Andere Quellen verweisen darauf, dass eher amorphe Hydroxide $Al\,(OH)_3$ und $AlO\,(OH)$ entstehen müssen [78, 79], weil deren Auskristallisation, die später beobachtet wird, bei geringeren Temperaturen (um 400 °C) stattfindet verglichen mit 800 °C für amorphes Al_2O_3. Die ca. 17 nm dicke Reaktionszone zwischen dem oxidierten und dem nicht oxidierten Bereich ist durch flüchtiges Arsen und Intermediat As_2O_3 geprägt [80]. Die Breite dieser Reaktionszone hängt von der gewählten Umgebungstemperatur ab. Die Diffusionsdurchlässigkeit der Oxidationsfront für flüchtige Reaktionsprodukte ist aufgrund des vorhandenen As_2O_3 deutlich reduziert. Damit kann die Temperaturabhängigkeit des Prozessmodus und beobachtete lineare oder parabolische Oxidationsrate erklärt werden [79].

Mit fortschreitender Oxidation dringt die Reaktionszone immer tiefer in die Schicht ein und hinterlässt das reine amorphe $(Al_xGa_{1-x})_2\,O_3$ bzw. die oben erwähnten amorphen Hydroxide. Die amorphe Phase ist instabil unter hoher Temperatur im Oxidationsofen aber auch bei REM-Aufnahmen, also bei Elektronenbeschuss [81]. Die ca. 17 nm dicke Oxidationsfront bleibt hingegen unter Elektronenbeschuss stabil [81] und zeigt auch einen anderen amorphen Kontrast im Transmissionselektronenmikroskop [77] als das reine $(Al_xGa_{1-x})_2\,O_3$. Die hinter der Oxidationsfront liegende instabilen amorphen α-AlO_x- und Hydroxid-Phasen transformiert sich bei hoher Umgebungstemperatur oder unter Elektronenbeschuss zu einem Granulat aus kristallinem γ-Al_2O_3 in einer amorphen Matrix. Die Kristallite entstehen ohne feste Orientierung und haben typischerweise eine Ausdehnung von 4 nm bis 20 nm [82, 83]. Des Weiteren wurden Kavitäten geringer Dichte in einem 1 μm breiten und der Oxidationsfront folgenden Bereich gefunden. Derartige poröse Struktur erlaubt das Entweichen flüchtiger Reaktanden wie Arsen oder Wasserstoff. Energiedispersive Röntgenspektroskopie an einem Oxidabschnitt zeigte weniger als 2 % an ursprünglich vorhandenem Arsen [82].

Erst die Auskristallisation zu γ-Al_2O_3-Kristalliten führt zur bekannten Volumenreduktion einer oxidierten $Al_xGa_{1-x}As$-Schicht. Die amorphe Phase weist keine Veränderung des Volumens pro Aluminiumatom auf [78] (s. Tabelle 4.2). Ausgehend von eingenommenen Volumina pro Aluminiumatom in $AlAs$ und γ-Al_2O_3 ist eine Volumenreduktion von ca. 20 % maximal möglich. Derartige geometrische Veränderung ginge mit einer zu großen mechanischen Belastung der Struktur einher. Messungen am reinen AlAs, welches vollständig durchoxidiert wurde, zeigten eine Volumenreduktion von ca. 12 % bis 13 % [72, 84]. Dies ist darauf zurückzuführen, dass eine oxidierte Schicht kein Al_2O_3-Monokristall bildet, sondern aus Kristalliten in einer amorphen Phase besteht. Deren Anzahl pro Volumeneinheit variiert mit der Oxidationszeit oder Expositionsdauer im Elektronenmikroskop [78, 81].

Tabelle 4.2: Von einem Aluminiumatom in einer kristallinen oder amorphen Verbindung eingenommenes Volumen. Erst die Auskristallisation zu γ-Al_2O_3-Kristalliten verursacht die bekannte Volumenreduktion einer oxidierten Al(Ga)As-Schicht. Die Dichte des polykristallinen Gefüges ist abhängig von der Oxidationszeit, so dass nicht nur durch Zugabe von Ga, sondern auch durch Reaktionszeitdauer die Volumenkontraktion gesteuert werden kann [78].

Material:	$AlAs$	$Al\,(OH)_3$	γ-Al_2O_3
Volumen pro Al-Atom [Å]:	3,57	3,49	2,85

Die Aperturschicht umgebendes GaAs wird an der Grenze zu AlOx oxidiert und wird auch amorph, dabei substituiert Sauerstoff das vorhandene Arsen. Die Schicht ist nicht homogen, es bleiben Bereiche schwacher Oxidation und messbarer Fernordnung mit ausgeprägten Maxima in Beugungsbildern der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie [83]. Die Oxidationstiefe beträgt 2,5 nm bis 6 nm [83, 84]. Wichtig ist zu bemerken, dass die Oxidation von GaAs ohne anwesende oxidierte Aluminiumschicht, wie z. B. an der frei liegenden Mesaflanke oder bei geringen Konzentrationen von Aluminium ($x < 0{,}7$) in aluminiumhaltigen Schichten $Al_xGa_{1-x}As$ nicht stattfindet.

Homogenität des verwendeten *In-situ*-Oxidationsofens

Die in der Arbeitsgruppe vorangetriebene Weiterentwicklung von VCSELn verlangte nach einem Neubau eines *In-situ*-Oxidationsofens. Seine Homogenität stand nie im Zentrum der Entwicklung, denn eine Unsicherheit von wenigen μm konnte mit Leichtigkeit durch entsprechendes Maskendesign abgefangen werden. Für Einzelphotonenemitter, insbesondere für die Untersuchung der verspannungsinduzierten Nukleation in Abhängigkeit vom Aperturdurchmesser im Bereich zwischen 0,2 μm und 1 μm, war ein homogener Oxidationsprozess von Vorteil. Entsprechende Homogenität vorausgesetzt wäre man mit einem Maskendesign in der Lage, feine Abstufung der Mesendurchmesser herzustellen. Die optische Auflösung des verwendeten UV-Lithographieverfahrens würde zwar die 50 nm-Auflösung der Elektronenstrahl-geschriebenen Maske nicht wiedergeben, die absolute Genauigkeit und Reproduzierbarkeit über dem gesamten Wafer sind aber auch nicht notwendig. Es ist ausreichend, die Variation lokal zu betrachten. Dabei bleiben die Lackschichtdicke, Belichtungsintensität, Entwicklungslösung und Temperatur des Ausheizschrittes annähernd gleich, so dass die sehr feine Abstufung der Mesen auf dem Wafer lokal reproduziert wird.

Dafür spricht auch die elektrische Charakterisierung der Proben. Die Grenze zwischen Strom leitenden und nichtleitenden, also vollständig und nicht vollständig oxidierten Mesen ist diskret. Betrachtet man zwei Spalten mit 200 nm Vergrößerung des Durchmessers von links nach rechts an der Stelle der vollständigen Oxidation (vgl. Abb. 4.6), so sind die Mesen in der linken Spalte stets elektrisch nicht leitend und in der rechten leitend. Wäre die lokale Unsicherheit

der UV-Lithographie in der Größenordnung von 200 nm, so wäre die Grenze diffus. Einige Mesen in der linken Spalte wären noch nicht vollständig oxidiert und würden Strom leiten und einige in der rechten Spalte bereits elektrisch nichtleitend. Dies wurde bei keiner Probe beobachtet. Was jedoch beobachtet wurde, war die Verschiebung der Grenze der vollständigen Oxidation auf dem Wafer von einer Einheitszelle zur Nächsten. Dies ist aufgrund der Inhomogenität der Prozesse der UV-Lithographie, Trockenätzung und der Oxidation leicht verständlich. Der Abstand zweier Einheitszellen betrug ca. 4,7 mm. Bei einem derartig großen Abstand ist die Homogenität aller oben genannten Parameter wie z. B. Lackdicke oder Temperatur des Wafers während Oxidation nicht mehr gegeben.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Homogenität des Gesamtprozesses zur Herstellung von Oxidaperturen untersucht. Dazu wurden auf einem 2″-Testwafer Mesen mit Aperturschicht hergestellt und im *In-situ*-Ofen oxidiert. Da die epitaktische Schichtstruktur keinen oberen Spiegel aufwies, war die Apertur einer direkten optischen Beobachtung zugänglich. Es wurden ca. 250 Mikroskopaufnahmen äquidistant auf der gesamten Oberfläche liegender Mesen aufgenommen und mit einem LabVIEW-Programm ausgewertet.

Das Programm zur Auswertung detektierte zunächst per Mustererkennung alle kreisförmigen Objekte auf jedem Bild und ermittelte ihre Mittelpunkte. Für jedes Objekt wurden acht radiale Strahlen aus dem ermittelten Mittelpunkt definiert und entlang dieser Strahlen der Verlauf der Helligkeit bestimmt. Sowohl an der Oxidationsgrenze als auch am Mesenrand existieren Helligkeitssprünge, deren Position bestimmt wurde (s. z. B. Abb. 4.9). Anschließend wurde aus den beiden Radien die Oxidationstiefe bestimmt. Die acht Messwerte pro Mesa erlaubten außerdem eine Mittelwertbildung und automatische Erkennung einer Fehlfunktion des Algorithmus. Eine falsch bestimmte Kante im Helligkeitsprofil äußerte sich nämlich als Ausreißer aus einer festgelegten Standardabweichung σ. Die ermittelten Oxidationstiefen wurden in einer Tabelle festgehalten und sind in der Abbildung 4.12 visualisiert.

Die Vermessung der Homogenität offenbarte eine Streuung der Oxidationstiefe von 11 μm am Rand des Wafers bis 16,7 μm an der Stelle des Maximums. Mögliche Ursachen sind in der verwendeten UV-Lithographie, Trockenätze und Oxidationsofen zu suchen. Bei dem verwendeten Lithographieverfahren kann es zu systematischen Abweichungen der Mesendurchmesser auf dem Wafer kommen, wenn z. B. die Lackdicke nicht konstant ist, die Ausleuchtung der Maske inhomogen ist, ihr Abstand im Kontaktmodus zum Wafer insbesondere bei gekrümmten Wafern variiert und die Entwicklung im Entwicklerbad nicht gleichmäßig stattfindet. Beim Trockenätzverfahren kann lateral eine Verschiebung des Gleichgewichts zwischen chemischer und physikalischer Ätzkomponente stattfinden, so dass der Durchmesser bei dominierendem chemischen Anteil aufgrund der Isotropie des Prozesses kleiner ausfällt. Schließlich hängt die Oxidationsrate entsprechend der Arrhenius-Gleichung exponentiell von der Temperatur ab [85]. Laterale und zeitliche Temperaturveränderungen auf der

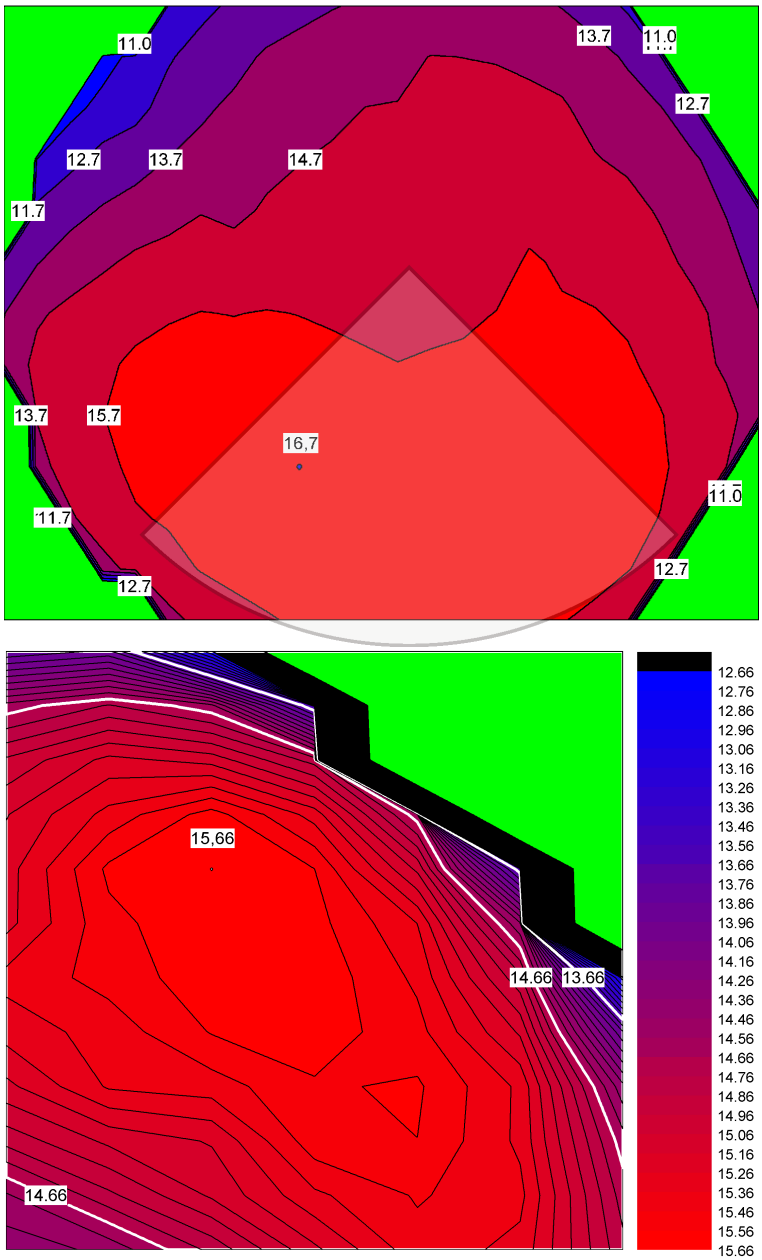


Abbildung 4.12: Die Verteilung der Oxidationstiefen bei einem Oxidationsprozess im *In-situ*-Ofen. Oben: Die Oxidationstiefe wurde an 250 äquidistant auf einem 2″-Wafer verteilten Mesen ausgewertet. Dazu wurden manuell Mikroskopaufnahmen aller Mesen angefertigt. Die Bestimmung der Oxidationstiefen geschah automatisch mit einem selbstgeschriebenen LabVIEW-Programm an jeder der 250 Aufnahmen. Die ermittelten Oxidationstiefen lagen zwischen 11 μm und 16,7 μm. Zusätzlich eingezeichnete Markierung kennzeichnet die optimale Position im Oxidationsofen für ein Viertel eines 2″-Wafers. Unten: Auswertung der Oxidation eines Viertelstücks eines 2″-Wafers platziert im Oxidationsofen an der markierten Stelle. Auf ca. 90 % der Fläche bleibt die Inhomogenität unter 1 μm.

Heizoberfläche des Ofens würden die Oxidationsrate deutlich beeinträchtigen.

Die auf einem 2″-Wafer gemessene Inhomogenität des Prozesses liegt außerhalb einer vertretbaren Toleranz, die in einen Maskensatz integriert werden könnte indem man den Durchmesser variiert (s. Abschnitt 4.4.1). Einerseits ist die Gradation des Durchmessers um 100 nm für die Positionierung der Quantenpunkte nötig, andererseits wären alle Durchmesser zwischen $x\,\mu$m und $x + 11{,}4\,\mu$m notwendig. Daraus ergäbe sich eine geeignete Mesa auf 113 ungeeignete. Dieses technologische Problem war im vorliegenden Fall leicht zu lösen, denn die Probenherstellung geschah stets auf Viertelstücken von 2″-Wafern. In der Abbildung 4.12 oben ist zusätzlich eine Markierung eingetragen, die eine optimale Position für ein Viertelstück visualisiert. Ein anschließend exakt an dieser Stelle positioniertes und oxidiertes Viertel wies auf ca. 90 % seiner Oberfläche eine Inhomogenität von lediglich 1 μm auf. Die erhobenen Daten dienten bei der späteren Entwicklung des Maskendesigns als Richtwerte für die Festlegung der Anzahl und Gradation der Mesen pro Einheitszelle.

Wege zur genauen Kontrolle der Oxidationsrate

Die im Abschnitt 3.5.5 vorgestellte Simulation mehrerer Aperturen zur Steigerung der Auskoppeleffizienz bedingt eine genaue Kontrolle der Oxidationsrate. Hierbei reicht es nicht, eine Apertur mit gewünschtem Durchmesser herzustellen, es müssen mehrere Schichten in einem einzigen Oxidationsschritt verschiedene Oxidationstiefen erreichen. Dies wäre mit einer schichtspezifischen Reaktionsgeschwindigkeit möglich. In der Referenz [77] sind mehrere Abhängigkeiten der Reaktionsgeschwindigkeit beschrieben. Die Abhängigkeiten, die schichtspezifisch eingesetzt werden können, sind Aluminiumgehalt einer Schicht und ihre Dicke. Im Kompositionsbereich x zwischen 0,85 und 1 hängt die Oxidationsrate einer $Al_xGa_{1-x}As$-Schicht ungefähr exponentiell vom Aluminiumgehalt x ab. Auch die Abhängigkeit von der Dicke ist bis ca. 40 nm exponentiell, erst bei dickeren Schichten ab 50 nm bleibt die Rate konstant.

Eine Kontrolle der Schichtdicke im Nanometerbereich oder des Aluminiumgehalts im Prozentbereich erzielen bei exponentieller Abhängigkeit der Oxidationsrate nur unzureichende Steuerung des Prozesses. Auch die Auswirkung der Aperturen auf das elektromagnetische Feld sind nur ab einer Dicke in der Größenordnung $\lambda/4$ feststellbar, so dass die Dicke einer Aperturschicht nicht unter 70 nm liegen sollte. Beide Effekte für sich allein sind zu ungenau, können aber gleichzeitig in einem Übergitter zur feinen Justage der Oxidationsrate ausgenutzt werden [86].

Die von Suarez *et al.* in [86] untersuchten Übergitter bestanden aus einer Schichtfolge von 0,6 nm bis 1,7 nm $Al_xGa_{1-x}As$ mit einer Aluminiumkonzentration x zwischen 0 und 0,7, und einer 3 nm bis 8 nm dicken Schicht aus $AlAs$. Die Oxidationsrate wurde in Abhängigkeit von den Schichtdicken zueinander und Komposition der $AlGaAs$-Schichten untersucht. Die Rate folgte bei der Variation der $AlAs$-Schichtdicke dem bekannten Zusammenhang [77], die Dicke

der *AlGaAs*-Barrieren und Komposition erlaubte aber eine feinere Kontrolle des Prozesses. Zusätzlich kann damit eine Aperturschicht trotz einer festen Dicke mit variabler Rate oxidiert werden. Auch speziell geformte Grenzen der Oxidschicht oder zusätzliche diffraktive Eigenschaften der Grenze sind denkbar.

4.4.6 Abscheiden dielektrischer Schichten

Für die Herstellung von Hartmasken sowie für die elektrische Isolation der Bauelementoberfläche wurde das Dielektrikum Siliziumnitrid verwendet (s. Abschnitt 4.4.1 und Abb. 4.13). Das Aufbringen einer Si_3N_4-Schicht geschah mittels induktiv gekoppelten plasmagestützten CVD-Verfahrens (engl. *inductively coupled plasma-enhanced chemical vapor deposition*, IC-PECVD). Die verwendeten Ausgangsstoffe Silan (5 % in He), Ammoniak und Trägergas Argon werden in einem Reaktor bei 8 Pa mittels einer 400 W-Hochfrequenzquelle in einen plasmatischen Aggregatzustand überführt. Da keine Bias-Spannung wie bei einer RIE- oder Sputteranlage vorhanden ist, ist eine derartige Plasmabeschichtung isotrop, schonend zur Oberfläche und weist nur eine geringe Verspannung auf. Eine isotrope Isolation ist für das nachfolgende Aufbringen von Metallzuleitungen zur Mesaoberfläche erforderlich. Ist die Seitenflanke nicht isoliert, dann wird die pin-Diode durch die Metallisierung kurzgeschlossen (s. Abschnitt 4.4.7).

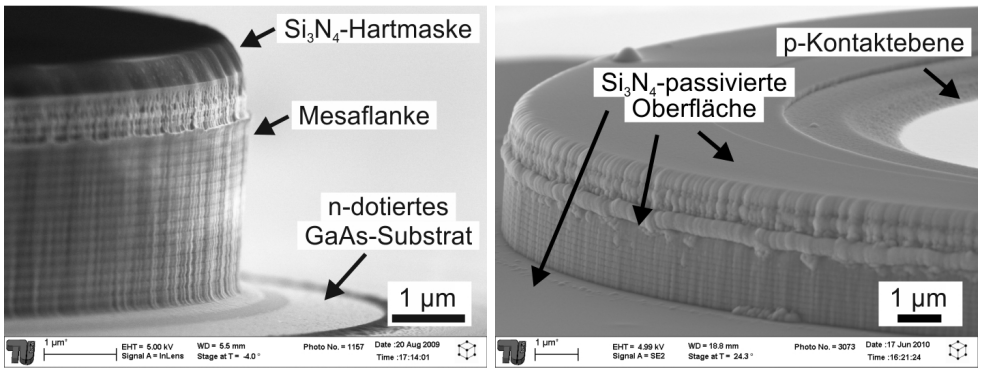


Abbildung 4.13: Die linke Sekundärelektronen-REM-Aufnahme zeigt die Flanke einer mittels ICP RIE trockengeätzten Mesa mit einer Siliziumnitrid-Hartmaske auf der Mesaoberfläche. Das Wegätzen der 3 μm bis 4 μm hohen Schichtstruktur bis zum hoch n-dotierten GaAs-Substrat ist beim alten Herstellungsprozess notwendig, um den Metall-Halbleiter-Kontaktwiderstand des n-Kontakts zu verringern. Anschließende Rückstrukturierung der Hartmaske beschädigt zusätzlich die Mesaoberfläche. Die beim neuen Herstellungsprozess erforderlichen Ätztiefen von unter 300 nm lassen sich hingegen auch mit einer Lackmaske erreichen. Ihre Rückstrukturierung ist deutlich oberflächenschonender. Rechts: Die Si_3N_4-Schicht dient als Isolator zwischen der später aufzubringenden Zuleitung zur p-Kontaktebene und dem n-dotierten GaAs-Substrat. Die p-Kontaktfläche auf der Mesa ist bereits mit einem RIE-Trockenätzprozess geöffnet.

Die Oberflächentemperatur des zu beschichtenden Substrats beeinflusst die mechanischen und optischen Eigenschaften der abgeschiedenen Schicht. Je niedriger diese Temperatur ist, umso poröser die Schicht [87]. Damit verringert sich der Brechungsindex und die Stabilität des Dielektrikums. Andererseits zeigen Lacke bessere Haftung bei porösen Oberflächen. Stabilität und Haftung lassen sich dennoch verbinden, indem zunächst eine harte und stabile Schicht hergestellt wird, und anschließend eine wenige zehn Nanometer dicke poröse Beschichtung für bessere Lackhaftung durchgeführt wird.

Beim verwendeten IC-PECVD-Verfahren weist das deponierte Material eine geringe Verspannung auf und schont die Oberfläche, weil das Plasma nicht in der Nähe der Probe erzeugt wird. Im Bezug auf die mechanische Stabilität eines Bauelements ist dies vorteilhaft, weil die oxidierte Apertur bereits stark verspannt ist und durch äußere Einflüsse die Deckschicht abplatzen könnte. Die Schichtstruktur einer dielektrischen Passivierung bestand typischerweise aus ca. 350 nm Siliziumnitrid abgeschieden bei 300 °C Substrattemperatur und 10 nm bis 100 nm Siliziumnitrid bei 100 °C. Bei nicht ausreichender Haftung einer Lackmaske gab es eine weitere Möglichkeit der Präparation der Oberfläche mit Flusssäure. Dabei wird die Oberfläche des Siliziumnitrids in einer 7-prozentiger Lösung für wenige Sekunden angeätzt.

4.4.7 Kontaktmetallisierung

Das elektrische Anregen einer pin-Diodenstruktur und damit das Befüllen von Quantenpunkten mit Elektron-Loch-Paaren geschieht über Metallzuleitungen und zwei Metall-Halbleiter-Übergänge auf der p- und n-dotierten Seite der Diode. Der elektrische Widerstand der Übergänge sollte klein gegenüber dem Gesamtwiderstand des Bauelements sein und sich ohmsch verhalten. Dadurch werden die dynamischen Eigenschaften des Bauelements verbessert. Ein ohmsches Verhalten des Übergangs wird erreicht, indem die zu kontaktierende Halbleiterschicht mit Dotierleveln von $10^{18}\,\mathrm{cm}^{-3}$ bis $10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ vergleichsweise hoch dotiert wird, spezielle Kontaktmetalle oder Metalllegierungen Verwendung finden und Kontaktmetalle in den Halbleiter thermisch einlegiert werden.

Abhängig von der Art der Kontaktmetalle und Halbleiter am Übergang verhält sich dieser entweder als Schottky-Barriere oder als ohmscher Kontakt. Wenn sich im Bereich der Metall-Halbleiter-Kontaktregion eine Verarmungszone bildet, dann erhält man am Übergang eine Schottky-Diode, ohne eine Verarmungszone ist der Übergang ohmsch. Für das Verständnis ist eine Betrachtung der Banddiagramme und Austrittsarbeiten der am Übergang beteiligten Stoffe notwendig. In der Abbildung 4.14 sind Energiebänder und Verbiegung der Bandkanten vor und nach einem idealen Kontakt zwischen einem Metall und einem n-dotierten Halbleiter dargestellt. Im oberen Teilbild ist die Austrittsarbeit des Metalls A_m kleiner als die des Halbleiters A_{HL}, was zu einem ohmschen Übergang führt. Im unteren Teilbild gilt $A_m > A_{HL}$ und hat ein Diodenverhalten zur Folge.

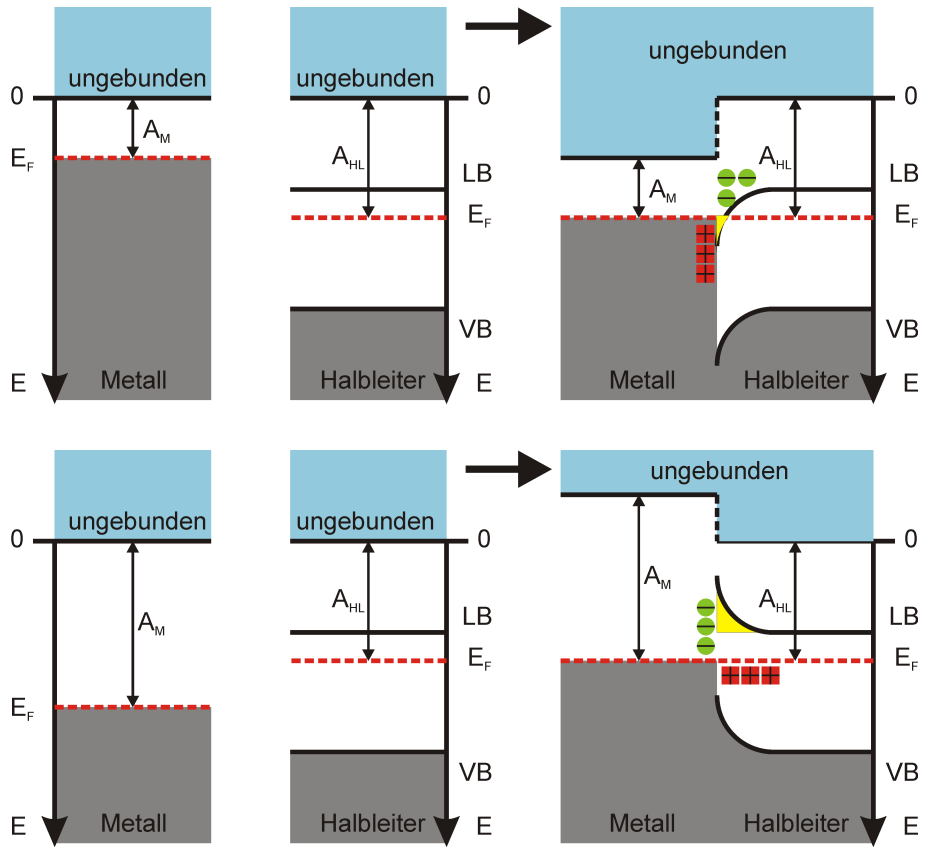


Abbildung 4.14: Dargestellt sind die Verbiegung der Energiebänder und die Aufladungseffekte beim idealen Übergang zwischen einem Metall und einem n-dotierten Halbleiter. Oben: ohmscher Kontakt. Die Austrittsarbeit A_m des Metalls ist kleiner als die des Halbleiters A_{HL}. Nach Kontaktherstellung verschieben sich die Elektronen in den Halbleiter und hinterlassen eine dünne geladene Schicht mit einer Debyelänge von weniger als 1 nm. In einem wenige Nanometer dicken Abschnitt liegt die Fermi-Energie oberhalb der Leitungsbandkante. Die Elektronen in dieser Schicht sind frei beweglich und bilden ein quasi-zweidimensionales Elektronengas. Die freie Beweglichkeit der Majoritätsladungsträger im Halbleiter und das Fehlen einer Potentialbarriere sind ursächlich für das ohmsche Verhalten. Unten: Schottky-Kontakt. Die Austrittsarbeit A_m des Metalls ist größer als die des Halbleiters A_{HL}. Im Zustand des Gleichgewichts bildet sich im Halbleiter eine Potentialbarriere und eine ausgedehnte Verarmungszone. Sie verursachen ein Diodenverhalten der Kontaktschicht.

Im thermodynamischen Gleichgewicht gleichen sich die elektrochemischen Potentiale des Halbleiters und des Metalls an. Ist A_m kleiner als A_{HL} (s. Abb. 4.14 oben), so fließen nach dem Zusammenfügen der Materialien die Elektronen aus dem Metall in den Halbleiter und hinterlassen an der Kontaktgrenze im Metall eine positiv geladene Schicht. Sie schirmt aufgrund von hoher Konzentration an beweglichen Ladungsträgern das durch Ladungsver-

schiebung entstandene elektrische Feld innerhalb einer Debyelänge von weniger als 1 nm ab. Im n-dotierten Halbleiter ergänzen die Elektronen die schon vorhandenen Majoritätsladungsträger und bleiben beweglich, benötigen allerdings wegen niedrigerer Konzentration deutlich größere Debyelänge um das Feld abzuschirmen. Wegen der Beweglichkeit und der erhöhten Dichte der Majoritätsladungsträger bildet sich keine Verarmungszone und der Übergang wird ohmsch. Die Ladungsverschiebungen führen zum Verbiegen der Kanten des Valenz- und des Leitungsbandes. In Gelb ist ein entarteter Bereich im Halbleiter markiert, in dem die Fermi-Energie oberhalb der Leitungsbandkante liegt. Die Elektronen in dieser wenige Nanometer dicken Schicht sind frei beweglich in einer Ebene. In Wachstumsrichtung sind sie eingeschränkt und bilden damit ein quasi-zweidimensionales Elektronengas.

Anders verhält es sich, wenn A_m größer als A_{HL} ist (s. Abb. 4.14 unten). Nach dem Kontakt fließen die Elektronen vom Halbleiter ins Metall und hinterlassen eine Verarmungszone, also eine ausgedehnte Raumladungszone mit festen, positiv geladenen Ionen ohne bewegliche Ladungsträger. Im Metall bilden die Elektronen eine dünne Schicht und schirmen analog innerhalb eines Nanometers das Feld ab. Die Ladungsträgerverschiebung führt zum Verbiegen der Bandkante, diesmal allerdings bildet sich eine Barriere für den Elektronenfluss, die als Schottky-Barriere bezeichnet wird. Es existieren mehrere Transportprozesse, die einen Stromfluss durch die Barriere ermöglichen. Bei der sogenannten thermionischen Emission hat ein Elektron genug thermische Energie um die Barriere zu überwinden. Dieser Prozess ist dominierend bei Schottky-Dioden, er überwiegt bei moderate Dotierung ($\leq 10^{17}/cm^3$) und Zimmertemperatur. Mit steigender Dotierung verringert sich die Höhe der Barriere und quantenmechanisches Tunneln wird möglich. Damit lassen sich auch Metalle trotz größerer Austrittsarbeit für einen ohmschen Kontakt verwenden. Des Weiteren rekombinieren Elektronen und Löchern in der Raumladungszone wie bei einem pn-Übergang, mit einer noch geringeren Wahrscheinlichkeit diffundieren die aus dem Metall in den Halbleiter injizierten Löcher in den neutralen Bereich und rekombinieren dort mit den Elektronen.

Untersuchungen an III-V-Halbleitern haben gezeigt, dass das deponierte Metall sowohl mit dem Halbleiter Verbindungen eingehen, als auch in den Halbleiter eindiffundieren kann [88]. Die so entstehenden Defekte in unmittelbarer Umgebung der Kontaktoberfläche führen unabhängig vom verwendeten Metall zu einer Schottky-Barriere [89]. Auch die Herstellung einer sauberen Halbleiteroberfläche ist mit hohem Aufwand verbunden. Die Oberfläche des Halbleiters müsste direkt vor Metallisierung zusätzlich zum üblichen Reinigen und Entfernen der Oxide mittels einer Säure unter Ultrahochvakuum *in situ* mit z. B. Argon-Ionen von Oxiden gereinigt werden, sonst bildet sich stets ein Halbleiter-Halbleiteroxid-Metall-Kontakt. Dieser ist unter normalen Herstellungsbedingungen unvermeidlich.

Die chemische Reaktion der III-V-Halbleiter mit dem Kontaktmetall sowie die unvermeidliche Oxidschicht zwischen Halbleiter und Metall führen dazu,

dass fast immer eine mehr oder weniger ausgeprägte Schottky-Barriere ausgebildet wird. Um ohmsche Kontakte herzustellen muss also der Tunnelstrom als primärer Ladungstransportprozess verstärkt werden, indem eine hochdotierte Schicht als Kontaktoberfläche benutzt wird. Die nun von der Austrittsarbeit im gewissen Rahmen unabhängige Wahl des Metallkontakts kann sich nach anderen Kriterien wie Einfachheit der Verarbeitung, Haftungseigenschaften, Diffusionshemmung in den Halbleiter oder spätere zuverlässige Kontaktierung richten.

Die Metallisierung von Kontaktflächen und Zuleitungen der in dieser Arbeit entwickelten Einzelphotonenemitter fand in Metallaufdampfanlagen statt. Die Materialien Nickel, ein Gold-Germanium-Eutektikum $Au_{0,88}Ge_{0,12}$ und Gold für den n-Kontakt wurden thermisch in einem Hochvakuumreaktor verdampft. Das Material wurde in Wolfram-Tiegel resistiv bis zur Schmelzung erhitzt und der entstandene Dampf kondensierte auf einer kopfüber hängenden Probe. Die Schichtdicken betrugen entsprechend 10 nm, 100 nm und 350 nm. Die Probe ist typischerweise mit einem strukturierten Negativlack bedeckt (s. Abschnitt 4.4.3). Aufgrund großer mittlerer freien Weglänge sind Zusammenstöße bis zum Auftreffen auf der Probe unwahrscheinlich, der Prozess ist also hoch anisotrop und der Unterschnitt der Lackkante für den späteren Lift-off-Schritt bleibt unbeschichtet. Anschließend wird der Lack in einem NMP-Bad aufgelöst, das auf dem Substrat gelandete Material bleibt haften und der Rest löst sich von der Oberfläche und verbleibt im Bad.

Für den p-Kontakt wurden Titan, Platin und Gold verwendet. Die Materialien wurden mit einem Elektronenstrahlverdampfer bei Hochvakuum evaporiert und kondensierten wieder anisotrop auf der Substratoberfläche. Bei der Metallisierung der p-Zuleitung zur Mesaoberfläche war die Anisotropie zum Teil unerwünscht, weil auch eine senkrechte Mesaflanke beschichtet werden musste. Die Lösung war eine Verkippung der Probe um ca. 30° bis 40° bezüglich der waagerechten Ebene derart, dass die entsprechende Mesaflanke dem Dampfstrahl ausgesetzt wurde. Die Schichtdicken betrugen 20 nm bei Titan, 50 nm Platin, 350 nm Gold und abschließend 50 nm Platin.

5 Angewandte Messverfahren zur Untersuchung von Einzelphotonenemittern

Neben der Erzeugung einzelner Photonen mittels neuartiger Bauelemente, also der Ausrichtung dieser Arbeit, müssen auch die verwendeten Messmethoden erwähnt werden, die zum Einsatz kamen und verbesserte Eigenschaften dieser Bauelemente enthüllten. Die Detektion einzelner Photonen ist mit einigem Aufwand verbunden, denn aufgrund der geringen Energie einzelner Lichtquanten, insbesondere im verwendeten infraroten Bereich zwischen 900 nm und 1000 nm, ist das Signal-Rausch-Verhältnis sehr klein. Die siliziumbasierten CCDs für Aufnahmen von Emissionsspektren einzelner Bauelemente werden auf ca. -120 °C gehalten, um das thermische Rauschen des Chips zu reduzieren. Die zugrunde liegende CCD-Technik erlaubt jedoch nicht das Detektieren einzelner Photonen. Hierzu werden Avalanche-Photodioden (avalanche photodiode, APD) im Geiger-Modus betrieben, ihre Funktionsweise wird im folgenden Abschnitt kurz erläutert.

Die Höhe der Lawinenimpulse in Einzelphotonendetektoren ist unabhängig von der Anzahl der gleichzeitig auftreffenden Photonen und anschließendes Quenching der Lawine bedingten eine Totzeit, so dass trotz einer ausreichenden Sensitivität Antibunching als Nachweis einzelner Photonen nicht detektiert werden kann. Hierzu bedient man sich einer statistische Analyse des Photonenstromes mittels zweier Detektoren und eines Strahlteilers (s. Abschnitt 2.2). Die Aufnahme einer derartigen Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung ermöglicht eine quantitative Beschreibung der Güte einer SPS.

Der Nachweis lateraler Position eines optisch aktiven Quantenpunktes war mittels einer Oberfläche abtastenden Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie möglich. Es kamen zwei Verfahren zum Einsatz. Bei dem Ersten wurde der Kryostat mit der eingebauten Probe mittels Schrittmotor-betriebener Lineartische grob bewegt, das feine Abrastern wurde mit Piezotisch realisiert. Der zweite Aufbau war nach dem Prinzip eines konfokalen Laser-Scanning-Mikroskops aufgebaut, wobei im Rahmen dieser Arbeit die Laseranregung nicht verwendet wurde.

Der Nachweis weiterer Quantenpunkte, die entweder inaktiv oder bei μ-EL-Anregung vom Strom nicht durchflossen wurden, gelang mit einem μ-CL-Aufbau in einer Kooperation mit der Gruppe von Prof. Reitzenstein. Durch Ladungstrennung in der aktiven Zone lädt sich üblicherweise eine pin-Struktur bei Elektronenbeschuss innerhalb kürzester Zeit so weit auf, bis der Flachbandfall eintritt. Danach rekombinieren die getrennten Ladungsträger innerhalb der gesamten aktiven Zone und nicht nur am Ort der Elektronenstrahlanregung und das Kathodolumineszenzsignal ist nicht mehr ortsaufgelöst. Erst eine elektrische

Kontaktierung der Bauelemente im CL-Kryostat erlaubte eine zusätzliche Vorspannung und damit eine definierte Bandverbiegung. Der dabei fließende Strom ergab eine zusätzliche Observable, die zur Bestimmung der Aperturposition ausgenutzt werden konnte.

5.1 Detektion einzelner Photonen

Das Detektieren einzelner Photonen wurde zunächst mittels Photomultiplier realisiert. Es handelte sich um spezielle Elektronenröhren mit sehr hohem Verstärkungsfaktor. Einzelne Photonen treffen auf eine Photokathode und lösen Elektronen heraus. Diese werden dann beschleunigt, treffen auf die erste Dynode und lösten weitere Elektronen aus. Der Elektronenpuls wird über mehrere nachgeschaltete Dynoden weiter verstärkt bis sich ein Strompuls von ca. 10^6 Elektronen bildet und von einer Elektronik gemessen wird. Die Photomultiplier hatten jedoch geringe Quanteneffizienz und ausgeprägtes Rauschverhalten.

Die nächste technologische Weiterentwicklung war die Entwicklung von Si-APDs. Es handelte sich um einen negativ vorgespannten pn- oder pin-Übergang unterhalb der Durchbruchspannung mit ausgedehnter aktiven Zone von wenigen Zehn bis Hundert Nanometer. Ähnlich einem Photomultiplier generieren Photonen in der aktiven Zone Elektron-Loch-Paare, diese werden im angelegten Feld beschleunigt und erzeugen durch Stoßionisation weitere Elektron-Loch-Paare. Liegt die Spannung unterhalb des Durchbruchs, so ist die Lawine durch Reibungsverluste begrenzt und ein Photon erzeugt im Mittel 10^2 bis 10^3 Ladungsträgerpaare. Eine derartige Betriebsweise erzeugt Signale proportional zur einfallenden Strahlungsleistung, der Verstärkungsfaktor ist jedoch zu gering für Detektion von einzelnen Photonen.

Der Nachweis einzelner Photonen gelingt, wenn die Spannung oberhalb des Durchbruchs liegt. Die speziell für derartigen Betrieb entwickelten APDs werden als Einzelphotonendetektoren oder SPAD (single-photon avalanche diode) bezeichnet. Oberhalb der Durchbruchspannung wächst die Ladungsträgerlawine exponentiell und kommt nicht mehr zum Erliegen, so dass ein einzelnes Photon makroskopische Ströme generiert und Verstärkungsfaktoren von 10^6 bis 10^8 möglich sind. In diesem sogenannten Geiger-Modus ist das Signal nicht mehr proportional zur Photonenzahl, so dass ein SPAD nicht zwischen einem und mehreren gleichzeitig ankommenden Photonen unterscheiden kann.

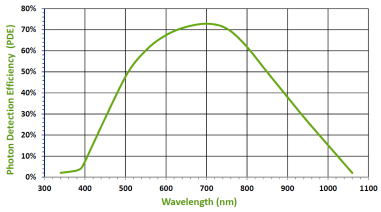
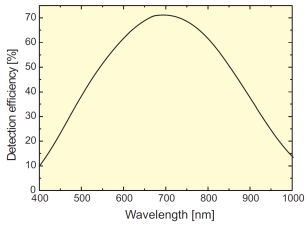
Der exponentielle Stromanstieg muss begrenzt und anschließend unterbunden werden, damit die aktive Zone nicht beschädigt wird und für das nächste Ereignis wieder bereitsteht. Dies geschieht entweder durch aktives oder passives Quenching, im einfachsten passiven Fall durch einen Vorwiderstand oder aktiv durch spezielle Elektronik, die innerhalb weniger Nanosekunden nach einem Durchbruch die Sperrspannung absenkt. Der Lawinendurchbruch, seine elektronische Detektion, das Absenken und wieder Anlegen der Sperrspannung bedingen eine Totzeit des Detektors nach einem Ereignis, die vergehen muss bis der Detektor für ein weiteres Ereignis zur Verfügung steht.

Neben der Totzeit ist die Unsicherheit der Zeitmessung, das sogenannte Jitter, von Bedeutung. Typische Größen sind hierbei einige Zehn bis Hundert Pikosekunden. Diese Unsicherheit begrenzt die zeitliche Auflösung einer Messung indem das zeitaufgelöste Signal stets mit der Übertragungsfunktion, typischerweise einer Gauss-Funktion, gefaltet wird. So ist z. B. der Wert $g^{(2)}(0)$ als Messwert für die Güte des Emissionsverhaltens einzelner Photonen, den man aus einer Autokorrelationsmessung ermittelt, stets schlechter als ein Wert, der mit einem idealen Detektor gemessen wäre.

Das Rauschen in einem digitalen Photonenzählmodus manifestiert sich als eine Dunkelzählrate, also Detektionsereignisse ohne dass ein Photon mit der aktiven Zone wechselwirkt. Sie werden z. B. durch sekundäre kosmische Strahlung, Störfelder, radioaktive Zerfälle und thermische Anregung verursacht. Die thermische Anregung mittels Defekte, die tief in der Bandlücke sitzenden Zwischenniveaus generieren, als Hauptbestandteil der Dunkelzählrate lässt sich durch Kühlung des Detektors beseitigen. Dies führt jedoch zum Ansteigen von Nachimpulsen. Ihre Ursache liegt darin, dass Ladungsträger des vorhergehenden Durchbruchs in einem Defekt für kurze Zeit gebunden werden können. Wenn sie sich wieder lösen und die aktive Zone erreichen, so kann wieder eine Ladungslawine ausgelöst werden. Wichtige Parameter für Nachimpulsen sind Defektdichte und Ladungsträgerlebensdauer.

In dieser Arbeit wurden zwei unterschiedliche Sets aus jeweils zwei SPADs benutzt, Perkin-Elmer SPCM-AQRH-13 und τ-SPAD-100 von PicoQuant. In der Tabelle 5.1 sind die wichtigen Parameter der beiden Detektoren zusammengefasst.

Tabelle 5.1: Spezifikationen der beiden in der Arbeit verwendeten APDs. Angaben entstammen den zugehörigen Datenblättern.

Detektor:	SPCM-AQRH-13	τ-SPAD-100
Jitter:	430 ps	800 ps
Dunkelzählrate:	200 1/s	100 1/s
Totzeit:	35 ns	<70 ns
Nachpulsen:	0,5 %	<1 %
Aktive Fläche ø:	180 μm	150 μm
Spektrale Effizienz:		

5.2 Mikroelektrolumineszenz- und Autokorrelationsmessaufbau

Für die Vermessung der Mikro-Elektrolumineszenz standen zwei Messanordnungen zur Verfügung. Beide erlaubten lateral-, spektral- und polarisationsaufgelöste Untersuchung der Elektrolumineszenz bei einstellbaren Kryotemperaturen sowie Vermessung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung mittels eines angeschlossenen HBT-Interferometers.

Beide Messaufbauten bestanden aus einem Kaltfinger-Durchflusskryostaten, Anordnung zum räumlichen Abtasten der Probenoberfläche und einem Spektrographen mit angeschlossenem CCD-Array. Sie unterschieden sich in Objektiven, im Funktionsprinzip der räumlichen Abtastung und in den verwendeten Spektrographen. Der erste Aufbau nutzte den Spektrographen Acton 2750 der Firma Princeton Instruments mit 750 mm Brennweite (s. Abb. 5.1). Eingestellt werden konnten zwei Gitter mit 600 Striche/mm und 1200 Striche/mm. Für die grobe Positionierung bei räumlicher Abtastung wurde die Probe samt Kryostaten mittels Schrittmotoren bewegt, für die Feinabtastung im μm-Bereich bewegte man das Objektiv mit einem 3-Achsen-Piezoscanner. Als Mikroskopobjektiv diente das 20X Mitutoyo Plan Apo NIR mit einer NA von 0,4 und Arbeitsabstand von 20 mm.

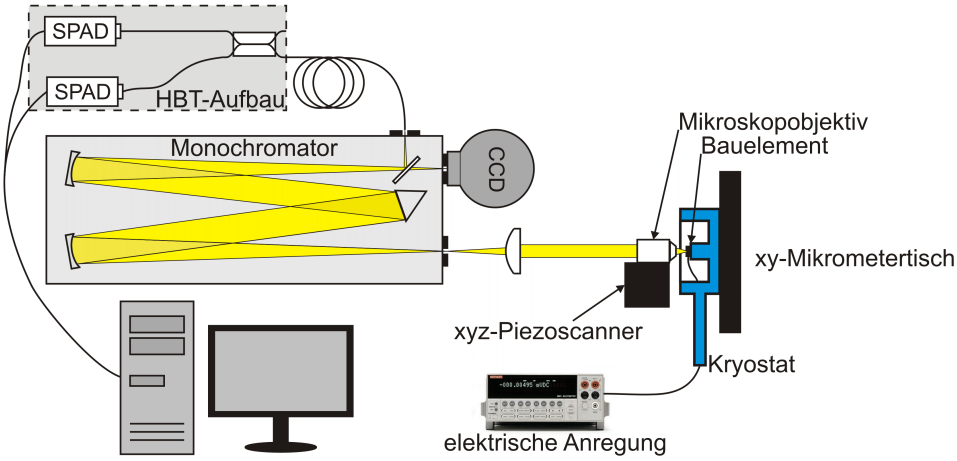


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des verwendeten Mikro-Elektrolumineszenzaufbaus mit nur einem Spektrographen und einer Piezosteuerung zur räumlichen Abtastung der Lumineszenz auf der Probenoberfläche. Der Kryostat ist auf einem xy-Mikrometertisch befestigt und lässt sich damit grob positionieren. Die Bewegung des auf einem xyz-Piezotisch angebrachten Mikroskopobjektivs erlaubt eine nanometergenaue Abtastung der Oberfläche. Das dispersive Element ist ein Monochromator mit 750 mm Brennweite. Der Ausgang lässt sich wahlweise auf ein CCD-Array oder auf ein glasfaserbasiertes HBT-Interferometer zur Vermessung der Autokorrelationsfunktion des Signals schalten.

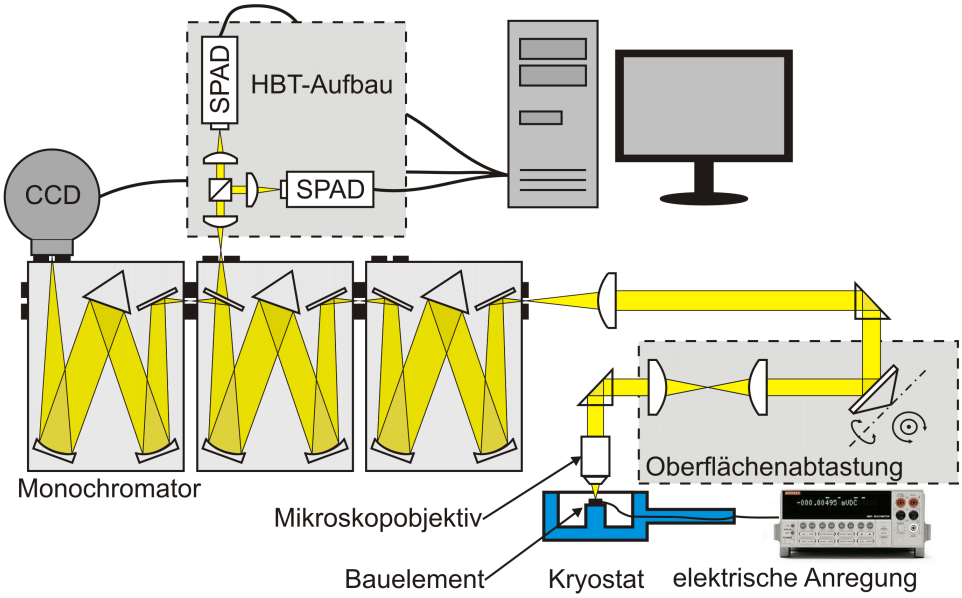


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung des verwendeten Mikro-Elektrolumineszenzaufbaus mit einem Dreifach-Spektrographen und einer konfokalen Laser-Scanning-Mikroskop-Anordnung zur räumlichen Abtastung der Lumineszenz auf der Probenoberfläche. Die Funktionsweise der Scanning-Anordnung ist in der Abbildung 5.3 dargestellt. Die Dispersion der Lumineszenz wird mit einem Dreifach-Spektrographen durchgeführt und die Spektralanteile mit einem CCD-Array detektiert. Der Ausgang des zweiten Monochromators kann umgeschaltet und in ein HBT-Interferometer eingekoppelt werden zur Vermessung der Autokorrelationsfunktion des Signals.

Beim zweiten Aufbau wurde das Signal mit einem Mikroskopobjektiv Olympus LMPlan IR 100x/0.8 eingesammelt, durch eine konfokale Laser-Scanning-Mikroskop-Anordnung geschickt und auf dem Eingangsspalt eines Dreifach-Spektrographen mit jeweils 500 mm Brennweite fokussiert (s. Abb. 5.2). Jeder Spektrograph ist mit drei Gittern ausgestattet, die mittels Software gewechselt werden können. Der erste und der zweite Spektrograph können additiv oder subtraktiv zueinander benutzt werden, um entweder die Auflösung zu erhöhen oder breitere Übersichtsspektren aufzunehmen. Die Scanning-Anordnung erlaubt das räumlich sub-μm-aufgelöste Empfangen der Lumineszenz, wobei eine Kreisfläche von bis zu 100 μm Durchmesser auf einem Bauelement abgetastet werden kann. Das Prinzip ist in der Abbildung 5.3 skizziert und basiert auf der Tatsache, dass das Licht aus verschiedenen Punkten der Brennebene einer Linse hinter dieser parallelisiert wird und zur optischen Achse einen Winkel aufweist, der für kleine Winkel proportional zur Position des Punktes bezüglich der optischen Achse ist. Mit Hilfe eines um zwei Achsen fein drehbaren Spiegels lassen sich parallele Strahlenbündel unterschiedlichen Winkels, und

somit Position auf der Probenoberfläche, in den Spektrographen einkoppeln. Am Spektrographenausgang wird das Licht mit einem siliziumbasierten und auf ca. -120 °C abgekühlten CCD-Array der Firma Roper Scientific (100BR) detektiert. Es besteht aus hundert Zeilen mit jeweils 1340 Pixeln, jeder Pixel hat eine Ausdehnung von $20 \times 20\,\mu$m. Das Signal wird auf 1340 spektrale Kanäle verteilt und die hundert Zeilen vereinfachen die Justage, so dass das Signal nicht auf eine einzige $20\,\mu$m breite Zeile justiert werden muss. Um das Signal zu verbessern kann Binning aller Zeilen durchgeführt werden, hierbei muss beachtet werden, dass die Lumineszenz nicht aus einem Punkt sondern aus einem Strich verarbeitet wird. Für bessere räumliche Auflösung auf der Probenoberfläche kann das Binning auf wenige Zeilen reduziert werden, damit ist die Detektionsfläche annähernd kreisförmig und der Durchmesser beträgt ca. $3\,\mu$m auf der Probenoberfläche. Das CCD-Array ist für nahes Infrarot optimiert und hat eine nominelle Effizienz von 90 % bei 800 nm.

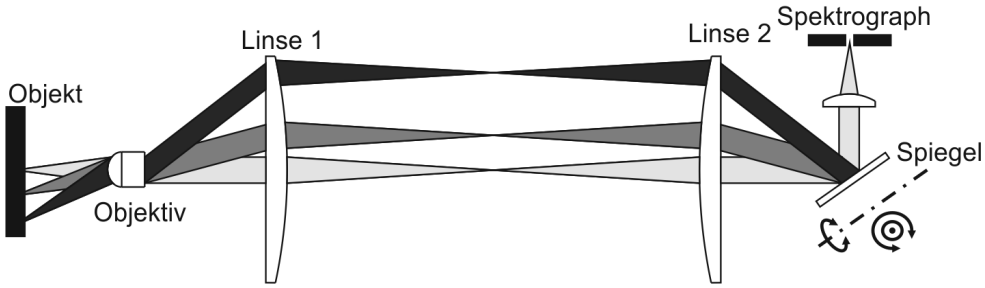


Abbildung 5.3: Dargestellt ist der in der Abb. 5.2 verwendete Aufbau zum lateral aufgelösten Aufnehmen von Mikro-Elektrolumineszenzspektren. Die Funktionsweise basiert auf einer konfokalen Laser-Scanning-Mikroskop-Anordnung. Liegt das Objekt in der Brennebene des Objektivs, so wird die Lumineszenz verschiedener Objektpunkte durch das Objektiv in parallele Strahlen überführt, die zur optischen Achse verschiedene Winkel aufweisen. Durch die Linsen 1 und 2 werden die auseinanderlaufenden parallelen Strahlen wieder zusammengeführt. Der in zwei Achsen drehbare Spiegel lenkt den gewünschten parallelen Bündel in einen Spektrographen. Damit lässt sich die räumlich auf dem Objekt verteilte Emission Punkt für Punkt abtasten und spektral untersuchen.

Beiden Messanordnungen konnte ein HBT-Interferometer nachgeschaltet werden. Die verwendeten SPADs sind im Abschnitt 5.1 beschrieben. Für die 50:50-Strahlteilung standen Strahlteiler-Glasfaser und Strahlteiler-Würfel zur Verfügung. Leitungsdurchführungen am Kryostaten erlaubten elektrische Anregung, an den Lötstellen des Chiphalters angelötet (s. Abb. 4.4) ließen sich bis zu fünf Einzelphotonenemitter ansteuern. Für die Anregung mit Gleichstrom wurde ein Keithley 2400, für gepulste Anregung ein 3 GHz HP 8142 benutzt. Mit Hilfe des HBT-Interferometers und zweier Einzelphotonendetektoren war es möglich, die zeitliche Korrelation der Photonen einer Quelle zu untersuchen, obwohl die Totzeit eines einzelnen Detektors deutlich länger war als die typische Rekombinationszeit von 1 ns eines Exzitons [36].

Im HBT-Interferometer gelangen die eingekoppelten Photonen zunächst auf einen 50:50-Strahlteiler. An beiden Ausgängen des Strahlteilers sind Einzelphotonendetektoren angebracht. Ein Ereignis am Detektor 1 löst eine Zeitmessung aus, ein weiteres Ereignis am Detektor 2 stoppt sie. Die so gewonnenen Zeitdifferenzen werden in einem Histogramm gespeichert, welches in guter Näherung die Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(t)$ repräsentiert. Die Totzeit spielt hierbei keine Rolle, weil für beide Ereignisse verschiedene Detektoren verwendet werden. Die zeitliche Auflösung begrenzte der Jitter der Detektoren und der Elektronik, denn das Signal wird stets mit der Übertragungsfunktion der Detektoreinheit gefaltet.

Ein anderes Kryostat der Firma CryoVac mit einer beweglichen Kontaktspitze stand später zur Verfügung. Damit war es möglich, ein entsprechendes Layout der Kontaktflächen eines Bauelements vorausgesetzt, alle Bauelemente zu untersuchen ohne die Probe aufzuwärmen, neu zu bonden und zu verlöten. Als Kontaktspitze wurde zunächst eine Nadel ohne jegliche Hochfrequenzanpassung benutzt. Die Aufnahme erlaubt jedoch auch die Benutzung von GSG-Kontaktspitzen, so dass ein entsprechendes Kontaktflächenlayout entwickelt wurde.

6 Experimentelle Ergebnisse

Dieses Kapitel fasst die Ergebnisse mehrerer verfolgter Ansätze zur Weiterentwicklung aktueller Einzelphotonenemitter im Hinblick auf Geschwindigkeit, Effizienz, Bauelement-Ausbeute und Güte des Antibunching-Verhaltens zusammen. Während einige Ansätze nicht erfolgreich waren, war es mit anderen möglich, einen Durchbruch zu verzeichnen.

Das erste erfolgreich realisierte RCLED-Konzept ist im Abschnitt 6.1 vorgestellt. Das überragende Ergebnis wurde zum Anlass, die Auskoppeleffizienz der Struktur und die Exzitonzerfallszeit durch höhere Gütefaktoren des Resonators weiter zu verbessern. Dies wurde durch systematische Variation der Anzahl der DBR-Schichtpaare realisiert und die Ergebnisse sind im Abschnitt 6.2 zu finden. Parallel hierzu begann die Erforschung der nanolithographischen und der nichtinvasiven verspannungsinduzierten Positionierung von Quantenpunkten. Sie versprach eine Verbesserung der Ausbeute an Bauelementen, die nur einen einzigen Quantenpunkt als aktive Emissionsquelle bereitstellen. Die Ergebnisse zum nanolithographischen Ansatz sind im Abschnitt 6.3 und die zur verspannungsinduzierten Positionierung im Abschnitt 6.4 untergebracht.

6.1 Elektrisch betriebene Resonant Cavity LED

Die Weiterentwicklung eines bereits erfolgreichen Ansatzes [46] bestand darin, quantenelektrodynamische Effekte aus einer Kopplung des Emitters an einen Resonator auszunutzen (s. Abschnitt 2.5). Die durch einen Mikroresonator erhöhte Modendichte von möglichen elektromagnetischen Zuständen in einer Mode vergrößert zum Einen die Wahrscheinlichkeit für eine strahlende Relaxation des Emitters in ebendiese Mode. Damit wird die Zerfallszeit der Anregung verringert und die alternativen Zerfallskanäle benachteiligt. Zum Anderen lässt sich durch entsprechende räumliche Gestaltung der Mode auch eine bevorzugte Auskopplung erreichen, was zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz führt. Beides, sowohl eine Erhöhung der Emissionsrate als auch der Auskoppeleffizienz sind für eine Einzelphotonenquelle zur Informationsübertragung von höchster Bedeutung.

Die Kopplung eines Quantenpunktes an einen Resonator gelang durch das Einsetzen der bisherigen Struktur in einen epitaktisch gewachsenen Mikroresonator. Bestehend aus 4 oberen und 12 unteren DBR-Spiegelpaaren betrug seine Zentralwellenlänge 960 nm und der Gütefaktor lag bei ca. 130. Die elektrische Anregung musste somit durch zwei Spiegel stattfinden. Für die Herstellung einer pin-Struktur wurde der obere Spiegel positiv und der untere negativ dotiert. Der Kern aus einer Quantenpunktschicht und einer Stromapertur blieb hingegen

identisch zur ursprünglichen Struktur aus Referenz [46]. Im Abschnitt 4.4.1 ist der zur Bauelementherstellung verwendete Prozessfluss beschrieben.

Erste spektrale Messungen ergaben eine deutlich höhere Intensität der Elektrolumineszenz gegenüber der ursprünglichen Struktur [46]. Da beim Vergleich stets Emissionen unterschiedlicher Quantenpunkte verglichen werden, kann man die Erhöhung der Intensität nur insgesamt mit einem Faktor 20 angeben. Neben der Wirkung der Resonatorstruktur sind weitere Einflüsse auf die Intensität vorhanden: Lage der Quantenpunkte zum Strompfad, unterschiedliche Stromdichte aufgrund verschiedener Aperturdurchmesser, variierende Defektdichte in der Nähe der Quantenpunkte und andere. Die Höhe der Einflüsse im Einzelnen kann nicht angegeben werden. Nach intensiver Suche konnte unter mehreren Dutzend eine Diode gefunden werden, die bei niedriger Anregung von 9,4 nA (1,5 V) in einem sehr breiten Spektralbereich nur das Licht eines einzelnen Quantenpunktes emittierte. Der Nachteil eines hohen Bauelementausschusses bei der Herstellung von Einzelphotonenemittern basierend auf einem selbstorganisierten Wachstum ist im Abschnitt 4.3 beschrieben.

In der Abbildung 6.1 ist ein Übersichtsspektrum der selektierten Diode bei T=15 K dargestellt. Die elektrische Anregung geschah gepulst mit einer Puls- und Periodendauer von 0,35 ns und 1 ns, was einer Modulationsfrequenz von 1 GHz entspricht. Das Layout der Zuleitungen auf dem Bauelement und dem Chiphalter sowie die Bonddrähte waren für Hochfrequenzmessungen nicht ausgelegt. Damit wurde ein signifikanter Teil der eingekoppelter Leistung bereits vor dem Quantenpunkt reflektiert. Um genügend Elektron-Loch-Paare in den Quantenpunkt zu pumpen, mussten die Spannungen der high- und low-Zustände der Rechteck-Pulse auf 1,72 V und 0,35 V erhöht werden. Mit diesen Werten war das Spektrum identisch mit dem einer kontinuierlichen Anregung mit 1,46 V, der Strom lag dabei um 5 nA. Die beiden Linien konnten mittels einer Kreuzkorrelationsmessung als Exziton- und Biexzitonrekombinationen eines einzelnen Quantenpunktes identifiziert werden (nicht gezeigt). Polarisationsmessungen wiesen eine Feinstrukturaufspaltung von 40 μeV des exzitonischen Zustandes auf. Die Halbwertsbreiten lagen um 155 μeV und die Bindungsenergie des Biexzitons betrug 3,6 meV.

Weitere Messungen der Elektrolumineszenz bei höheren Strömen zeigten, dass die gewünschte, den Stromfluss auf einen Quantenpunkt einschränkende Funktion der Apertur nicht mehr gewährleistet war. In der Abbildung 6.2 ist die Elektrolumineszenz auf der Mesaoberfläche des Emitters aus Abbildung 6.1 bei drei unterschiedlichen Anregungen dargestellt. Aufgenommen wurde es mit einer Webkamera, die im μ-EL-Setup zur Navigation auf der Probe eingesetzt wurde. Das linke Bild zeigt die Emission der Mesa bei U = 1,50 V, I = 9,4 nA und einer Integrationszeit von 3 s. Das zugehörige Spektrum mit nur zwei scharfen Linien entstammt einem einzigen Quantenpunkt, welcher sich in unmittelbarer Nähe zur Apertur befindet. Die mittlere Aufnahme entstand bei einer höheren elektrischen Anregung mit U = 1,60 V, I = 39 nA und gleicher Integrationszeit. Der kleine gestrichelte Kreis markiert die Emission des

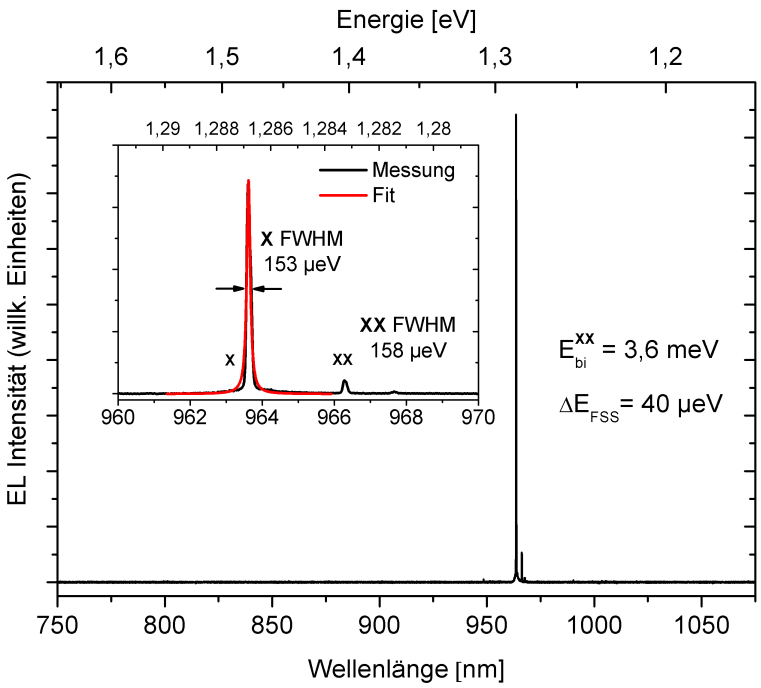


Abbildung 6.1: Das Spektrum einer selektierten Diode bei T=15 K und gepulster elektrischer Anregung mit einer Puls- und Periodendauer von 0,35 ns und 1 ns. In einem sehr breiten Spektralbereich von 750 nm bis 1075 nm sind nur zwei scharfe Linien sichtbar. Die Elektrolumineszenz der GaAs-Matrix um 830 nm und der Benetzungsschicht um 900 nm ist aufgrund einer effizienten elektrischen Anregung des Quantenpunktes nicht vorhanden. Verglichen mit früher publizierten Bauelementen ohne Mikroresonator [46] ist die Emission um Faktor 20 höher.

Quantenpunktes, der bereits in der linken Aufnahme sichtbar ist. Der deutlich höherer Strom reicht nun aus, um Dutzende Quantenpunkte auf der gesamten Mesaoberfläche leuchten zu lassen. Rechts bei U = 1,70 V und I = 128 nA leuchtet fast die gesamte Oberfläche. Die runde Form der Mesa und die obere Metallzuleitung, die die Emission des unteren Segments abdeckt, sind erkennbar (s. Abb. 3.1). Der markierte Quantenpunkt liegt am Nächsten zum Mittelpunkt der Mesa und somit zur Oxidapertur.

Analyse der Strom-Spannungs-Kennlinien von Mesen mit einem kleineren Durchmesser auf demselben Chip ergab, dass die oxidierte Schicht ein hinreichender Isolator war. Das Leuchten von Quantenpunkten auf der gesamten Mesaoberfläche ist auf sehr hohe Leitfähigkeit der Schichten zwischen der Apertur- und Quantenpunktschicht zurückzuführen. Bei kleinen Strömen ist die Stromdichte nur in der Nähe der Apertur hoch genug, um signifikante Elektrolumineszenz hervorzurufen. Mit steigendem Strom sättigt die Exzitonlinie, weil die Intensität durch die Zerfallszeit des Exzitons im Quantenpunkt begrenzt ist. Gleichzeitig verteilen sich die Ladungsträger räumlich in den

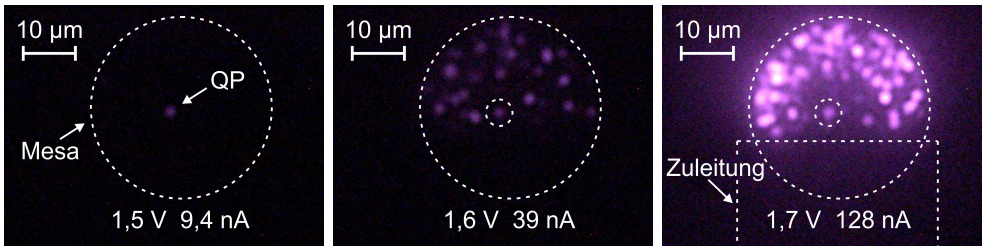


Abbildung 6.2: Mikroskopaufnahmen der Elektrolumineszenz des Bauelements aus Abb. 6.1 bei verschiedenen Pumpströmen und einer Integrationszeit von 3 s. Der große und der kleine gestrichelten Kreise markieren die Mesaoberfläche und die Position des Quantenpunktes, der als einziger bei niedriger Anregung Elektrolumineszenz aufweist. Die Autokorrelationsmessungen in Abb. 6.3 wurden an diesem Quantenpunkt durchgeführt. Die Oberfläche wird von der Metallzuleitung teilweise abgedeckt. Das verursacht die asymmetrische Form der Lumineszenz.

leitfähigen Schichten oberhalb der Apertur und regen weitere Quantenpunkte an, obwohl diese nicht unmittelbar oberhalb der Apertur liegen.

Die spektral reine Emission des Quantenpunktes der selektierten Diode und deren hohe Intensität waren Anlass, die Güte der Einzelphotonenemission (Antibunching) mittels Photonenstatistik zu untersuchen. Es sollte kurz erwähnt werden, dass das hierzu verwendete HBT-Interferometer mit zwei Einzelphotonendetektoren keine Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(t)$ misst, sondern ein Histogramm der Zeitdifferenzen zwischen zwei aufeinander folgenden detektierten Ereignissen. Die Autokorrelationsfunktion kann jedoch in guter Näherung durch ein derartiges Histogramm repräsentiert werden, wenn der beobachtete zeitliche Ausschnitt des Histogramms deutlich kleiner ist als die mittlere Zeit zwischen zwei detektierten Ereignissen. In vorliegender Arbeit betrug der für die Messung des Autokorrelationsminimums relevante Ausschnitt des Histogramms stets maximal 40 ns und die mittlere Zeit zwischen zwei Ereignissen ließ sich aus SPAD-Zählraten von $10^4\,\mathrm{s}^{-1}$ bis $10^5\,\mathrm{s}^{-1}$ zu $10\,\mu$s bis $100\,\mu$s abschätzen und somit die Näherung rechtfertigen.

Die Messung der zeitlichen Korrelation einzelner Photonen der Exzitonlinie X bei 964 nm ist in der Abbildung 6.3 dargestellt. Die Anregung der Elektrolumineszenz geschah im gepulsten Betrieb mit 1 ns Periode und 350 ps Pulsdauer. Die high- und low-Zustände lagen wegen nicht optimaler Impedanzanpassung und daraus resultierender hohen Reflektivität der elektrischen Anregung bei 1,70 V und 0,35 V. Die verwendeten SPADs begrenzten die Zeitauflösung des Messaufbaus auf ca. 600 ps. Dies erklärt das Fehlen von gepulster Modulation des Histogramms in der linken Teilabbildung. Der Einfluss der limitierenden Zeitauflösung wird mit Hilfe einer Simulation verdeutlicht. Als rote Kurve ist die Autokorrelationsfunktion eines Einzelphotonenemitters mit perfektem Antibunching-Verhalten ($g^{(2)}(0) = 0$) unter 1 GHz-gepulster Anregung und 600 ps Zeitauflösung simuliert. Aufgrund der unzureichenden Zeitauflösung

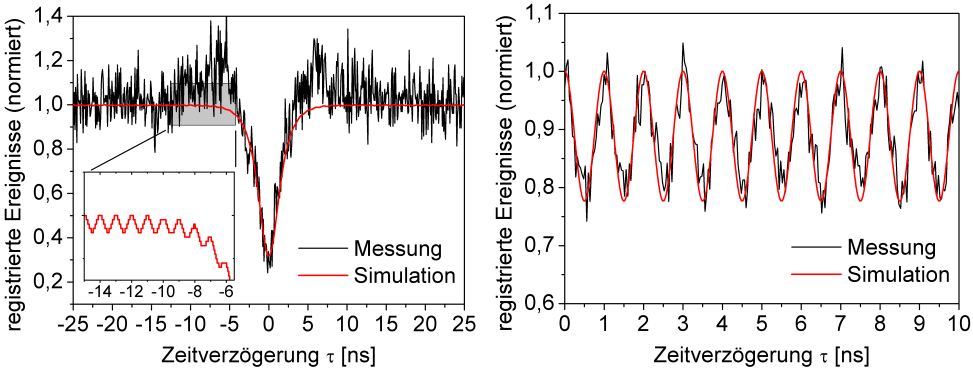


Abbildung 6.3: In der linken Abbildung ist die Autokorrelationsmessung der RCLED bei einer gepulsten Anregung mit 0,35 ns und 1 ns Puls- und Periodendauer dargestellt. Die Zeitauflösung des Messaufbaus von ca. 600 ps verhindert das Auflösen einzelner Lichtpulse in der Aufnahme. Die rote Kurve zeigt eine Simulation des Signals mit der gleichen Parameterwahl und einem idealen Emissionsverhalten $g^{(2)}(0) = 0$. Der $g^{(2)}(0)$-Wert von Null wird aufgrund der begrenzenden Zeitauflösung nicht erreicht. Die einzelnen Lichtpulse sind als Welligkeit der Grundlinie im vergrößerten Ausschnitt zu erkennen und gehen bei einer Messung im Messrauschen unter. Die Simulation stimmt sehr gut mit den Messdaten überein und bestätigt somit exzellente Einzelphotonenemission mit einem $g^{(2)}(0)$-Wert von Null. Rechts: Optische Antwort der RCLED bei der gleichen gepulsten Anregung. Zur Verbesserung der Zeitauflösung auf 400 ps wurde nur ein SPAD-Detektor benutzt. Ein Vergleich mit der Simulation eines Pulszuges bei 400 ps Zeitauflösung bestätigt, dass die Quelle im 1 GHz-gepulsten Regime arbeitet.

verschwindet die Modulation der Detektionsereignisse, wie sie bei einer gepulsten Quelle auftreten müsste. Lediglich eine Restwelligkeit zwischen 0,996 und 1 verbleibt, geht aber bei einer realen Messung im Rauschen der Messwerte unter. Die sehr gute Übereinstimmung mit der Simulation bestätigt das ausgezeichnete Antibunching der RCLED-Lichtquelle bei hochfrequenter elektrischer Anregung. Die Ergebnisse wurden in einer Fachzeitschrift publiziert [51].

Nicht nur die Zeitauflösung des Messaufbaus, sondern auch die Lebensdauer des Exzitons kann das Antibunching-Verhalten der Quelle im gepulsten Regime beeinflussen. Während die Zeitauflösung lediglich die Imperfektion des Aufbaus widerspiegelt und die Güte der Einzelphotonenemission nicht beeinflusst, führt eine zu lange Lebensdauer zu einem signifikanten Anstieg der Wahrscheinlichkeit, mehrere Photonen innerhalb einer Periode zu erhalten. Bei einer 1 GHz-Anregung und einer Lebensdauer des Exzitonzustandes von einer Nanosekunde wird innerhalb der ersten 1 ns-Periode nach Anregung mit einer Wahrscheinlichkeit von 63 % ein Photon emittiert. Innerhalb der zweiten und der dritten Periode sind es immer noch 23 % und 9 %. Damit sinkt die Güte und der $g^{(2)}(0)$-Wert steigt. Um derartiges Verhalten auszuschließen und klares Impulsverhalten der Lichtquelle zu demonstrieren, wurde die Start-SPAD aus dem Messaufbau entfernt und als Startsignal ein Triggerimpuls des Pulsgenerators

verwendet und damit die zeitliche Auflösung des Aufbaus auf 400 ps reduziert. Die gemessene optische Antwort des Emitters auf ein 1 GHz-Signal zusammen mit einer entsprechenden Simulation ist in der Abbildung 6.3 (rechts) zu sehen. Es wird deutlich, dass die Messung immer noch von der nun reduzierten Zeitauflösung begrenzt wird. Unter der Annahme einer typischen Lebensdauer eines Exzitons von einer Nanosekunde ohne Beeinflussung durch einen Resonator kann aus der Übereinstimmung mit dem Simulationsergebnis und sich daraus ergebener 400 ps Zeitauflösung auf eine Reduktion der Lebensdauer des Exzitons geschlossen werden. Aufgrund des durch den Resonator verursachten Purcell-Effekts lässt sich der Purcell-Faktor zu ≥ 2 schätzen.

6.2 Einfluss des Gütefaktors auf die Resonant Cavity LED

Die hervorragenden Ergebnisse der RCLED hinsichtlich der verbesserten Auskoppeleffizienz und der erreichten Taktfrequenz waren Anlass, die Effekte der resonanten Kopplung eines Quantenpunktes an mehreren Resonatoren höherer Güte systematisch zu untersuchen. Die bis dahin verwendete Schichtstruktur der pin-Diode bestand aus einem oberen Auskoppelspiegel mit 4 Spiegelpaaren, einem $3/2\lambda$-großen Resonator mit aktiver Zone und dem unteren Spiegel mit 12 Spiegelpaaren. Es wurde um drei weitere Designs mit variierender Anzahl der DBR-Schichten erweitert. Die aktive Zone blieb hingegen identisch. Damit wurde die Güte des Resonators systematisch verändert. Der obere DBR-Spiegel hatte nun 5, 7 oder 9 $Al_{0,9}Ga_{0,1}As/GaAs$-Spiegelpaare, der untere 12 oder 13 Spiegelpaare, so dass drei Resonatoren mit folgender Spiegelzusammensetzung realisiert wurden: 5/12, 7/13 und 9/13.

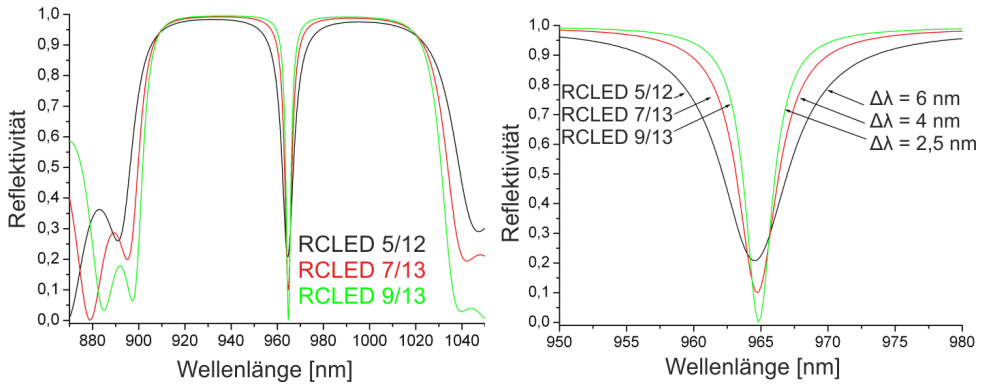


Abbildung 6.4: Eine Simulation der Strukturen mit 5/12, 7/13 und 9/13 Spiegelpaaren im oberen und unteren Bragg-Spiegel durchgeführt mit numerischer Simulationssoftware CAMFR. Die Berechnungen ergaben nominelle Gütefaktoren von 161, 241 und 386. Anhand dieser anschließend gewachsenen und prozessierten Strukturen wurde der Einfluss der Resonatorgüte auf die Auskoppeleffizienz und erreichbare Taktfrequenz systematisch untersucht.

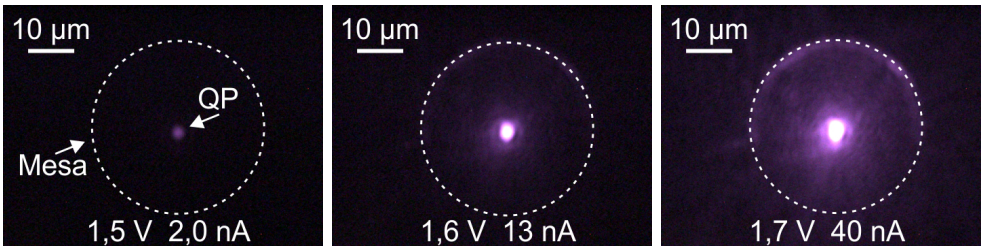


Abbildung 6.5: Elektrolumineszenz einer Mesa mit ca. 1 μm-breiten Aperturöffnung und 9/13 DBR-Spiegelpaaren bei 16 K. Deutlich sichtbar ist die strombegrenzende Funktion der Apertur. Keine weiteren Quantenpunkte außerhalb der Aperturregion sind optisch aktiv.

Das Design sah vor, die Resonatorwellenlänge bei 965 nm zu belassen und die Halbwertsbreite der Resonanz auf 6 nm, 4 nm und 2,5 nm zu verändern. Daraus ergaben sich Gütefaktoren von 161, 241 und 386. Entsprechend der Gleichung (2.35) sollte dadurch die Exzitonlebensdauer um Faktor 1,2, 1,6 und 3 gegenüber der ursprünglichen Struktur verkürzt werden. In der Abbildung 6.4 ist die Simulation dieser Strukturen dargestellt, durchgeführt mit numerischer Simulationssoftware CAMFR.

Die Reflektivität der Wafer wurde bei Zimmertemperatur vermessen und die Resonatorwellenlänge und Resonanzhalbwertsbreite bestimmt. Für die Charakterisierung bei Kryotemperatur von 10 K wurde der Wafer in einem Makro-Photolumineszenzaufbau spektroskopisch untersucht. Die gemessenen Werte sind in der Tabelle 6.1 zusammengefasst.

Die Abbildung 6.5 zeigt die Elektrolumineszenz der Mesaoberfläche einer exemplarisch ausgewählten Diode des 9/13-Wafers bei einer Temperatur von 16 K. Verglichen mit der Abbildung 6.2 ist die Emission auf den Aperturbereich der Mesa eingeschränkt. Die verbesserte Strombegrenzung der neuen Strukturen wurde jedoch durch eine zu hohe Quantenpunktdichte zunichte gemacht. Die angepeilte Quantenpunktdichte von $10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ wurde um eine Größenordnung nach oben verfehlt, so dass unter einer 1 μm-Apertur im Mittel 8 Quantenpunkte

Tabelle 6.1: Resonatorparameter der Strukturen gemessen bei Zimmer- und Kryotemperatur und der sich daraus ableitende Gütefaktor.

RCLED-Struktur:	5/12	7/13	9/13
Resonatorwellenlänge (300 K):	959,6 nm	952,1 nm	971,5 nm
Halbwetsbreite $\Delta\lambda$ (300 K):	6,8 nm	4,5 nm	3,5 nm
Resonatorwellenlänge (10 K):	946,5 nm	938,3 nm	957,2 nm
Halbwetsbreite $\Delta\lambda$ (10 K):	7,1 nm	5,2 nm	3,6 nm
Gütefaktor (10 K):	133	180	266

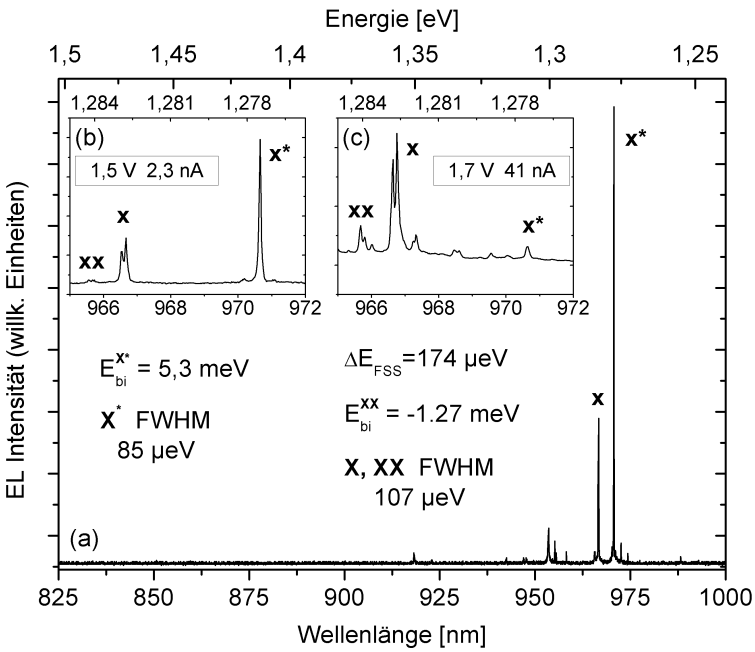


Abbildung 6.6: Elektrolumineszenz einer ausgewählten RCLED aus der Reihe mit 9 oberen und 13 unteren Spiegelpaaren aufgenommen bei einer Temperatur von 16 K. Die Messung der Spektren (a) und (b) fand unter einer Gleichstromanregung mit 1,5 V und 2,3 nA statt. Im Übersichtsspektrum (a) wird die Emission eines einzelnen Quantenpunktes von wenigen schwachen Linien überlagert. Der rechte Einsatz (c) zeigt das Emissionsspektrum bei einer höheren Pumpleistung von 1,7 V und 41 nA.

elektrisch gepumpt wurden. Neben dem zum Zeitpunkt noch verwendeten alten Layout (s. Abschnitt 3.3.2) verschlechterte die zu hohe Quantenpunktdichte nochmal die Ausbeute, so dass im Endeffekt keine weitere Diode mit den Eigenschaften der ersten RCLED gefunden werden konnte.

Verglichen mit anderen Dioden der 9/13-Reihe zeigen die aufgenommenen Spektren der RCLED in Abbildung 6.6 bei niedriger Anregung nur einen deutlich aktiven Quantenpunkt. Das Übersichtsspektrum wurde bei einer Pumpspannung von 1,5 V und einem Strom von 2,3 nA aufgenommen. Die hellste Linie X^* um 970,6 nm zeigt keine Feinstrukturaufspaltung und kann somit einem geladenen Exziton zugeordnet werden. Ihre Halbwertsbreite beträgt 85 μeV bei einem Auflösungsvermögen des Spektrographen von ca. 40 μeV. Die Bindungsenergie bezüglich des Exzitonzustandes X liegt bei 5,3 meV. Die Emissionslinie des Exzitons weist eine Feinstrukturaufspaltung von 174 μeV auf. Bei höherer Anregung mit 1,7 V und 41 nA wird die Emission des Biexzitons sichtbar und die Intensität der Trionlinie geht zurück. Die Halbwertsbreiten der beiden Biexzitonlinien entspricht denen des Exzitons innerhalb der Messunsicherheit und beträgt 107 μeV. Auch der gemessene Wert der Feinstrukturaufspaltung von

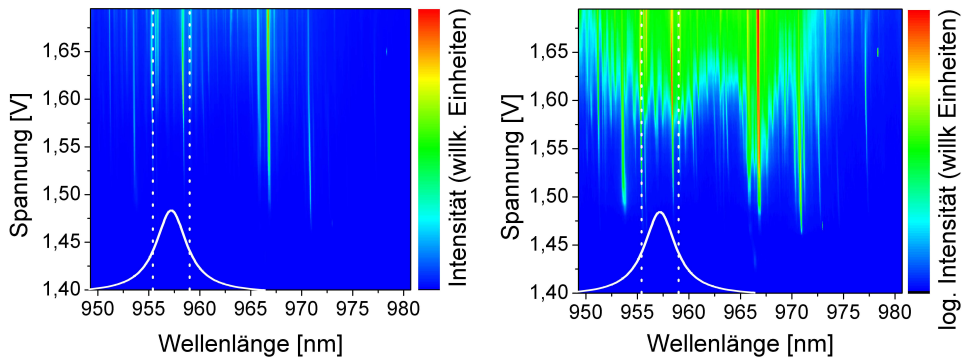


Abbildung 6.7: Elektrolumineszenz einer RCLED aus der 9/13-Reihe mit einem Gütefaktor von 266 in Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Die Temperatur der RCLED lag bei 16 K. Der Spektralbereich, den die Resonatormode zwischen 10 K und 300 K annehmen kann (s. Tabelle 6.1), wird vollständig abgebildet. Das Lorentzprofil und die punktierten Linien markieren die bei 10 K vermessene Resonatormode und ihre Halbwertsbreite. Im linken Bild ist die Farbkodierung der Intensität linear. Im rechten Bild ist sie logarithmisch, um den Dynamikbereich der Darstellung zu verbessern und den Einfluss des Resonators auf die Emissionslinien mit geringer Intensität hervorzuheben. In beiden Aufnahmen ist der Einfluss des Resonators nicht zu erkennen bzw. geht in der natürlichen Intensitätsverteilung der Quantenpunktlinien unter.

174 μeV ist für beide Übergänge gleich. Die Bindungsenergie des antibindenden Biexzitons liegt bei -1,27 meV.

Aufgrund der hohen Quantenpunktdichte und des sich ausweitenden Strompfades bei höheren Strömen werden in immer mehr Quantenpunkten Exziton-, Biexziton- und höhere/geladene Komplexe angeregt. Dies äußert sich als eine homogene und spektral breitbandige Untergrundlumineszenz mit immer mehr auftretenden Emissionslinien bei steigendem Strom. Auch bei der untersuchten RCLED wurde dieses Verhalten beobachtet. In der Abbildung 6.7 ist eine Spannungsreihe mit linearer und logarithmischer Darstellung der Intensität abgebildet.

Hohe Quantenpunktdichte ist vorteilhaft für die Untersuchung der Resonator-Quantenpunkt-Kopplung, denn neben dem Auswahlprozess eines Bauelements mit nur einem Quantenpunkt unter der Apertur muss die Emissionslinie dieses Quantenpunktes innerhalb der Halbwertsbreite der Resonatorwellenlänge liegen. Damit sinkt die Wahrscheinlichkeit nochmal deutlich, nur einen aktiven Quantenpunkt mit Resonanzemission in einer Diode zu finden. Bei höherer Quantenpunktdichte und Stromanregung sind jedoch genug Emissionslinien vorhanden, die innerhalb der Halbwertsbreite liegen.

Die in der Abbildung 6.7 dargestellten Spektren der 9/13-RCLED entstanden bei einer Temperatur von 16 K und überstreichen den Spektralbereich, den die Resonatorwellenlänge der 9/13-Struktur bei 10 K und 300 K annimmt. Die Werte sind in der Tabelle 6.1 zusammengefasst. Die punktierten weißen Linien

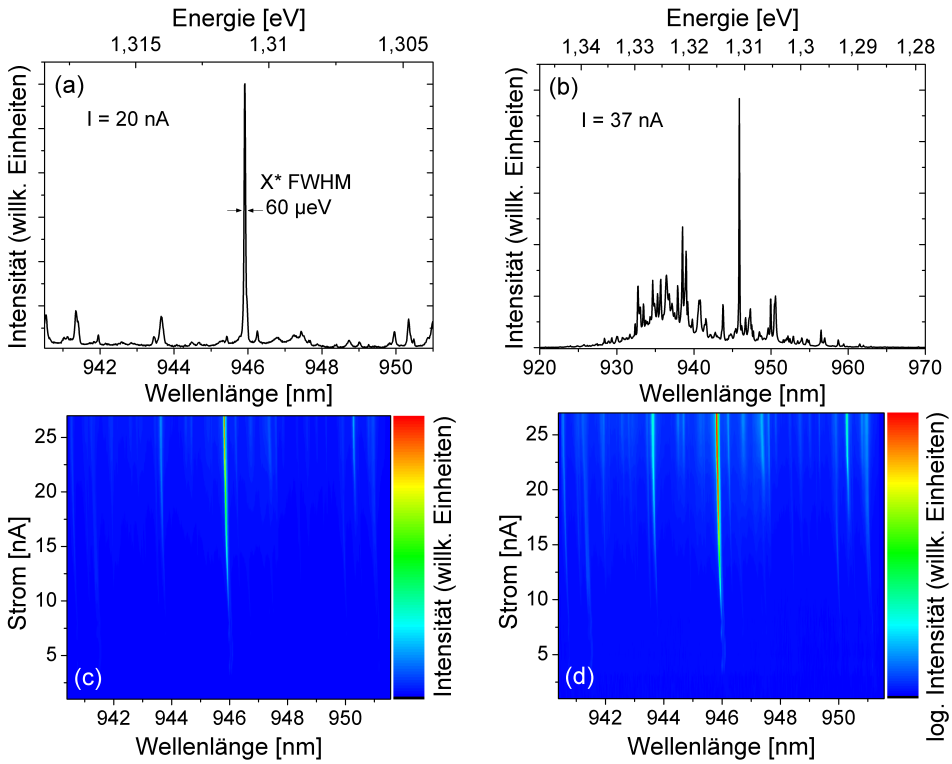


Abbildung 6.8: Spektren und Stromserien einer weiteren Diode der 9/13-Reihe aufgenommen bei einer Temperatur von 20 K. Die Diode zeichnet sich durch eine sehr helle Linie um 946 nm aus. Damit eignet sie sich hervorragend für Autokorrelationsmessungen, die anschließend durchgeführt wurden und in der Abb. 6.9 dargestellt sind. Die Halbwertsbreite der Linie in Abbildung (a) beträgt 60 μeV bei einer Anregung von 20 nA. Mit höherem Pumpstrom von 37 nA (b) leuchten aufgrund zu hoher Quantenpunktdichte viele Einzellinien. In den Stromserien mit einer linearen (c) und logarithmischen (d) Intensitätsskala wurde analog der Abb. 6.7 der Einfluss des Resonators nicht beobachtet.

markieren die gemessene Halbwertsbreite des 9/13-Resonators um seine Zentralwellenlänge bei 10 K. Das weiße Lorentz-Profil markiert die Resonatormode. In der Aufnahme mit der linearen Intensitätsskala (links) liegen die hellsten Emissionslinien außerhalb des Resonators. Auch mit massiv zunehmender Anregungsleistung und einer steigenden Anzahl an angeregten Emissionslinien und optisch aktiven Quantenpunkten ist ein eindeutiger Einfluss des Resonators auf die Elektrolumineszenz nicht zu beobachten.

Die Untersuchung des Antibunching-Verhaltens des Photonenstromes konnte an der Diode aus Abb. 6.7 nicht durchgeführt werden, weil das Signal-Rausch-Verhältnis der hellsten Emissionslinie hierzu nicht ausreichte. Die Spektren einer weiteren Probe der 9/13-Reihe mit einer um Faktor 6 helleren Emissionslinie bei vergleichbarem Untergrund ist in der Abbildung 6.8 zu finden. Das Übersichtsspektrum (b), aufgenommen bei einem Pumpstrom von 37 nA und 20 K

Probentemperatur, zeigt die um eine Größenordnung verfehlte Quantenpunktdichte als dichte Folge von spektral schmalen Emissionslinien. Der Einfluss des Resonators ist in den wieder linear (c) und logarithmisch (d) geplotteten Stromserien nicht erkennbar. Sichtbar ist jedoch eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses bei höheren Pumpströmen. Die helle Emissionslinie bei 946 nm hat bei einer niedrigeren Anregung von 20 nA in der Abbildung 6.8 (a) eine Halbwertsbreite von 60 μeV.

Die Güte der Einzelphotonenemission der Emissionslinie bei 946 nm wurde unter kontinuierlicher und gepulster Anregung untersucht (s. Abb. 6.9). Bei diesen Messreihen kamen SPADs mit 0,8 ns Zeitauflösung zum Einsatz, so dass die Zeitauflösung des Messaufbaus 1,13 ns betrug. Die Messung mit kontinuierlicher Anregung von 37 nA ergab einen $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,4. Nach der Entfaltung des Histogramms mit der Antwortfunktion des Messaufbaus wurde der Wert zu 0,1 bestimmt.

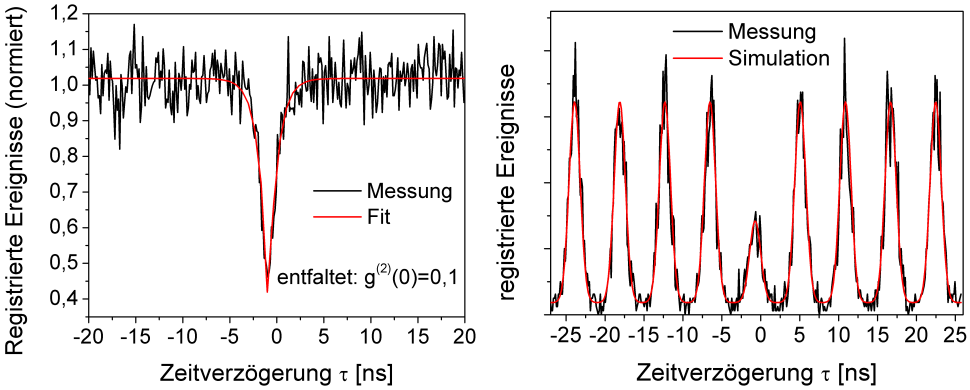


Abbildung 6.9: Links: Eine Autokorrelationsmessung der Emissionslinie um 946 nm der 9/13-RCLED aus Abb. 6.8. Die Diode wurde mit einem Gleichstrom von 37 nA angeregt. Die Kryostattemperatur lag bei 20 K. Die Zeitauflösung des Messaufbaus von ca. 1,13 ns kann mittels Entfaltung aus den Messdaten herausgerechnet werden. Damit erhält man einen $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,1. Rechts: Eine Autokorrelationsmessung bei gepulster Anregung mit 173 MHz Taktfrequenz. Der Fit ergab einen $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,4.

Die gepulste Anregung wurde bei einer Taktfrequenz von 173 MHz und 20 K durchgeführt. Bei einer weiteren Frequenzerhöhung brach die Intensität der Linie ein. Für die Auswertung wurde ein Pulszug aus acht Pulsen und ein unabhängiger Puls in der Mitte an die Daten gefittet. Der $g^{(2)}(0)$-Wert ergab sich zu 0,4 aus dem Quotienten der Fläche des mittleren Pulses zu der mittleren Fläche eines Pulses aus dem Pulszug.

Insgesamt lieferten die neuen Strukturen mit 5/12, 7/13 und 9/13 Spiegelpaaren im oberen und unteren Bragg-Spiegel vergleichbare Resultate mit der ursprünglichen 4/12-Struktur aus Abschnitt 6.1. Die höheren Gütefaktoren von bis zu 266 ergaben jedoch nicht die erhofften signifikanten Verbesserungen

der Auskoppeleffizienz und der Taktrate. Aus den gewonnenen Erkenntnissen lässt sich schließen, dass die in Abschnitt 6.1 beobachtete Intensitätssteigerung gegenüber einem resonatorlosen Design primär durch den unteren Bragg-Spiegel verursacht wurde [90]. Dafür sprechen die beobachtete breitbandige Verstärkung aller Emissionslinien einer Diode und das Fehlen einer schmalen Resonatormode im Emissionsspektrum. Weitere Tests mit deutlich höheren Gütefaktoren sollten hier Aufschluss bringen.

6.3 Positionierung von Quantenpunkten auf lokal strukturiertem Substrat

Alle bisher vorgestellten Bauelemente basieren auf dem Prinzip des selbstorganisierten Wachstums von Quantenpunkten im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus (s. Abschnitt 4.3). Das statistische Wachstum hat jedoch zur Folge, dass Bauelemente mit einem einzelnen Quantenpunkt unter der Apertur nur zufällig hergestellt werden können. Dies reduziert die Ausbeute an verwertbaren Bauelementen. Weitere Auswahlkriterien wie z. B. spektrale Übereinstimmung mit einer Resonatormode machen ein derartiges Bauelement zum Glückstreffer.

Dieser Abschnitt beschreibt einen im Rahmen dieser Arbeit verfolgten Ansatz zur Positionskontrolle des Quantenpunktwachstums. Für das Platzieren der Quantenpunkte wurde auf der n-dotierten (100) GaAs-Oberfläche zunächst eine 500 nm GaAs-Pufferschicht abgeschieden. Danach präparierte man mittels Elektronenstrahllithographie und nasschemischer Ätzung Löcher und Justiermarken. Die Löcher mit einer Größe von 18 nm bis 20 nm dienten als Keime für die Quantenpunktnukleation, die beim Abscheiden von nominell 1,2 bis 1,4 InAs-Monolagen entstanden. Nach einer 37 nm dicken undotierten GaAs-Kappschicht folgte die $Al_{0,9}Ga_{0,1}As$-Apertur und p-dotierte GaAs-Kontaktschicht. Das MBE-Wachstum und die Nanostrukturierung der Oberfläche übernahm Dr. Paola Atkinson.

Die Justiermarken waren an den ursprünglichen RCLED-Lithographiemaskensatz angepasst und konnten im Belichter während der Justage der ersten Prozessmaske beobachtet werden. Dies erlaubte ein gezieltes Platzieren eines einzelnen Quantenpunktes im Zentrum der Mesa und Reduktion der Anzahl unerwünschter selbstorganisiert gewachsener QPe in der Nähe der Apertur. Der Durchmesser der Apertur war hierbei im Gegensatz zu Bauelementen mit statistisch verteilten Quantenpunkten nicht mehr entscheidend, weil auch größere Aperturen den Strom auf nur einen QP begrenzen würden.

Die Abbildungen 6.10 (a) bis (c) zeigen CCD-Aufnahmen der Mesaoberfläche mit mehreren optisch aktiven Quantenpunkten bei verschiedenen Anregungsströmen und einer Umgebungstemperatur von 15 K. Die zugehörigen Positionen in der Spannungsserie (e) sind als punktierte waagerechte Linien markiert. In der Abbildung 6.10 (d) ist ein Übersichtsspektrum zwischen 780 nm und 1000 nm abgebildet, welches bei 2,25 V und einem Strom von 20 μA aufgenommen wurde. Neben breiter Lumineszenz um 910 nm sind zwei scharfe Linien um 930 nm

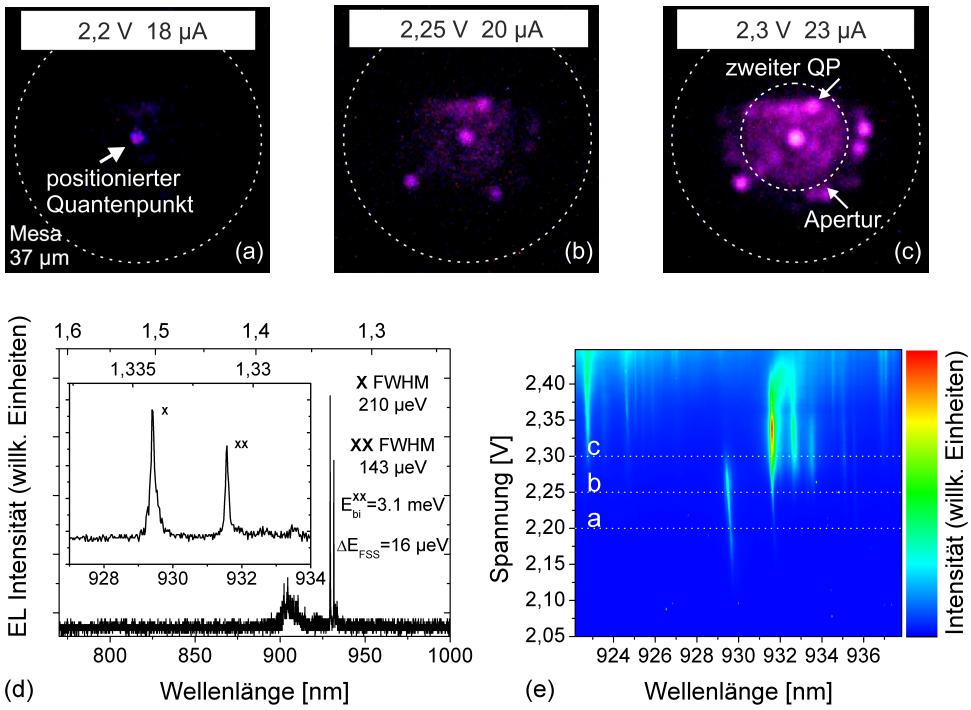


Abbildung 6.10: (a) bis (c): Elektrolumineszenz der Mesaoberfläche bei drei verschiedenen Anregungen und einer Kryostattemperatur von 15 K. Bei einer höheren Anregung (b) und (c) beginnt die Elektrolumineszenz der Benetzungsschicht und die Strombegrenzung der Apertur wird sichtbar. Neben dem positionierten Quantenpunkt im Zentrum befindet sich lediglich ein weiterer QP innerhalb der Apertur. Der Grund für die optische Aktivität außerhalb der Apertur liegt in der bereits beobachteten Aufweitung des Strompfades (s. Abb. 6.2). Die Abbildung (d) zeigt ein Übersichtsspektrum aus dem Zentrum der Mesa mit zwei scharfen Linien, die als Exziton- und Biexzitonzerfälle identifiziert wurden. (e): Eine Spannungsmessreihe mit linearer Intensitätskodierung. Punktierte Linien markieren die drei Anregungszustände (a), (b) und (c).

zu beobachten. Die breite Lumineszenz rührt von der strahlenden Rekombination in der Benetzungsschicht und den Linien selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte. Deren Größe ist kleiner verglichen mit den positionierten Quantenpunkten, weil die InAs-Agglomeration an den Stellen der geätzten Vertiefungen bevorzugt wird und die positionierten Quantenpunkte dadurch besser wachsen. Größere Quantenpunkte emittieren bei längeren Wellenlängen. Die scharfen Linien um 930 nm sind also einem positionierten Quantenpunkt zuzuordnen. Auch positionsaufgelöste Spektralmessungen ordneten die Quantenpunktemission dem Zentrum der Mesa zu.

Bei höheren Spannungen ab 2,25 V wird das homogene Leuchten der Benetzungsschicht unterhalb der Apertur sichtbar. Die Apertur wurde deutlich

größer hergestellt im Vergleich zum RCLED-Design, weil bei der Ausrichtung der ersten Mesenmaske an Elektronenstrahl-definierten Marken eine justagebedingte Fehlanpassung von mehreren Mikrometern auftreten konnte. Weiterhin kann damit das Auftreten von unerwünschten selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten studiert werden. Beim vorgestellten Bauelement befindet sich lediglich ein weiterer QP innerhalb der Apertur. Weitere optisch aktive Zentren liegen außerhalb und werden erst durch Aufweitung des Strompfades ausreichend angeregt. Der hohe Anregungsstrom, der ca. drei Größenordnungen höher ist als typischerweise bei RCLEDs, ist auf die Ausdehnung der Apertur und eine hohe Defektdichte des Substrats zurückzuführen. Defekte sind potentielle nichtstrahlende Rekombinationskanäle, die mit der strahlenden Rekombination um Ladungsträger konkurrieren.

Eine direkte Beobachtung der Feinstrukturaufspaltung der beiden Spektrallinien war auflösungsbedingt nicht möglich. Die polarisationsabhängigen Aufnahmen zeigten aber deren synchrone und gegenläufige spektrale Verschiebung. Damit sind beide Linien als Rekombinationen eines ungeladenen Exzitons und Biexzitons eines Quantenpunktes identifiziert. Die Energieverschiebung ergab eine Feinstrukturaufspaltung von 16 μeV. Die Messungen der Exzitonlinie sowie der Biexzitonlinie lieferten Halbwertsbreiten von 210 μeV und 143 μeV. Die Bindungsenergie des Biexzitons lag bei 3,1 μeV. Die Intensität des Quantenpunktes war nicht ausreichend, um Autokorrelationsmessungen durchzuführen. Hierzu wurde eine weitere Diode vom selben Wafer benutzt, die höhere Intensität gezeigt hat, aber auch mehr selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte aufwies.

Die Abbildung 6.11 links zeigt das Übersichtsspektrum einer weiteren Diode auf dem Wafer mit nanolithographisch vorpositionierten Quantenpunkten aufgenommen bei einer Temperatur von 15 K und einer Gleichstromanregung von 2,08 V und 0,62 μA. Die deutlich längere Wellenlänge von 969 nm im Vergleich zum Quantenpunkt in Abb. 6.10 entspricht einem größeren platzierten Quantenpunkt und ist ein Indiz für mehr InAs in der lokalen Umgebung während der Agglomerationszeit des Wachstums. Dies bestätigt auch die höhere Dichte an selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten, deren Emissionswellenlänge kürzer ausfällt und zwischen 910 nm und 940 nm liegt, kurz unterhalb der breiten Lumineszenz der Benetzungsschicht um 900 nm. Das Auftreten lokal variierender InAs-Konzentrationen auf demselben Wafer liegt an der Inhomogenität der Wachstumsanlage und wird gelegentlich auch ausgenutzt, um Konzentrationsgradienten herzustellen indem z. B. die Wafer-Rotation unterbrochen wird. Hierbei war es nicht der Fall. Die extreme Sensitivität des Nukleationsprozesses bezüglich der InAs-Konzentration macht eine derartige Variation der Quantenpunktdichte dennoch möglich.

Der Einsatz in der linken Abbildung ist eine spektral aufgelöste Oberflächenkartierung der Mikroelektrolumineszenz der Diode. In der Aufnahme wurde die Intensität der Emission aus einem spektral begrenzten Bereich von 960 nm bis 974 nm dargestellt, der die helle Emissionslinie um 969 nm einschließt. Die

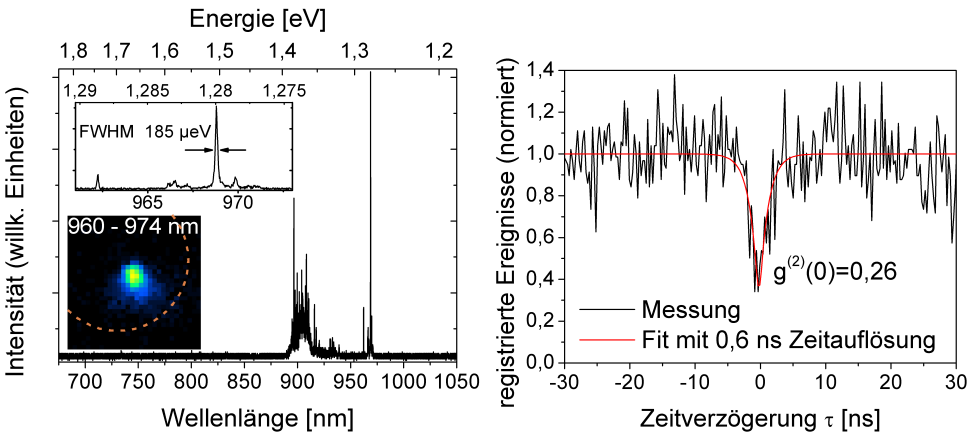


Abbildung 6.11: Links: Übersichtsspektrum der Elektrolumineszenz eines weiteren Bauelements mit einem vorpositionierten Quantenpunkt. Der Einsatz zeigt einen Scan der Mesaoberfläche: Für jeden Pixel wurde ein separates Spektrum aufgenommen. Die abgebildete Aufnahme zeigt die Verteilung der Intensität auf der Oberfläche detektiert im Bereich zwischen 960 nm und 974 nm. Nur ein Quantenpunkt ist in diesem Spektralbereich optisch aktiv. Seine Lage bezüglich der Mesa ist einer Fehljustage der ersten Mesenmaske geschuldet. Rechte Aufnahme zeigt eine Autokorrelationsmessung der Emissionslinie bei 969 nm. Der entfaltete $g^{(2)}(0)$-Wert beträgt 0,26. Zum Zeitpunkt der Aufnahme gab es keine vergleichbaren Publikationen für nanolithographisch vorpositionierte Quantenpunkte, die eine ähnlich schmale Linienbreite von 185 μm zusammen mit einem niedrigen $g^{(2)}(0)$-Wert aufwiesen.

Emission liegt nicht zentral innerhalb der Apertur. Die Mikroskopbilder zeigten aber die gleiche Fehljustage zwischen Elektronenstrahl- und Lithographiemarken, so dass es sich um einen positionierten Quantenpunkt handeln muss. Für Wellenlängen zwischen 910 nm und 940 nm sind mehr als fünf Quantenpunkte sichtbar. Die deutlich höhere Intensität der Linie erlaubte anschließende Autokorrelationsmessungen, die in der rechten Abbildung präsentiert sind. Das Bauelement zeigte deutliches Antibunching mit einem $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,37. Unter Berücksichtigung der begrenzten zeitlichen Auflösung des Messaufbaus wurde der reale Wert mit 0,26 bestimmt.

Der Einsatz einer invasiven Nanostrukturierungstechnik zur gezielten Platzierung von Quantenpunkten konnte erfolgreich in einem elektrisch gepumpten Bauelement umgesetzt werden. Für die deutlich geringere Intensität der Elektrolumineszenz gegenüber dem RCLED-Design können mehrere Gründe angeführt werden. Zum Einen fehlte der DBR-Resonator: Nach [90] führt allein ein unterer Spiegel zu einer Steigerung der Auskoppeleffizienz abhängig von der Reflektivität um bis zu Faktor 4 von 2 % auf 8 % und die Einführung eines oberen Spiegels verbessert die Auskopplung nochmals. Zum Anderen befindet sich der optisch aktive Emitter in unmittelbarer Nähe zur geätzten Stelle. Die Beschädigung einer epitaktisch gewachsenen Schicht führt zu Defekten, die sich beim

anschließenden Wachstum im Quantenpunkt und der Umgebung fortpflanzen. Defekte innerhalb eines Quantenpunktes erlauben nichtstrahlende Rekombinationskanäle, die mit der strahlenden Rekombination konkurrieren und die Intensität der Emission reduzieren [91]. Auch die Linienbreite wird durch Defekte außerhalb des Quantenpunktes beeinflusst. Diese fangen Ladungsträger ein und erzeugen damit sehr hohe und fluktuierende Felder, welche aufgrund des *quantum confined*-Stark-Effekts die Emissionslinie spektral verschieben. Dies findet auf sehr kurzen Zeitskalen statt und eine integrierende Messung des Spektrums registriert lediglich eine Linienverbreiterung [92], welche einen Aufschluss über die Defektdichte in der Umgebung des Quantenpunktes gibt. Dieser Effekt wird als spektrale Diffusion bezeichnet. Zu den erzielten Ergebnissen mit 185 μeV Linienbreite und $g^{(2)}(0)$=0,26 bei einem elektrisch getriebenen und vorpositionierten Quantenpunkt gab es zum Zeitpunkt der Entwicklung keine Analoga. Später publizierte Arbeiten anderer Gruppen zeigten Bauelemente mit Halbwertsbreiten der Emissionslinien von 650 μeV [53] und 170 μeV [93] und $g^{(2)}(0)$-Werte von 0,42 [93].

6.4 Bauelemente mit verspannungsinduzierter Quantenpunktpositionierung

Gleichzeitig neben den Arbeiten an Positionierung mittels invasiver Nanostrukturierung wurde in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. D. Bimberg ein prinzipiell neues Konzept zur verspannungsinduzierten Positionierung von Quantenpunkten mittels Oxidapertur entwickelt [42] (s. Abschnitt 3.3.1). Die Mitentwicklung und der erstmalige Einsatz des Konzepts in einer elektrisch betriebenen Struktur wurden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt und stellen einen Durchbruch dar im Bestreben, hervorragende Eigenschaften selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte mit einer Positionskontrolle zu verbinden. Als Nukleationskeim dient hierbei eine Verspannungsanomalie, welche von einer vergrabenen oxidierten Apertur verursacht wird. Der Herstellungsprozess eines derartigen Bauelements ist im Abschnitt 4.4.2 erläutert. Im Gegensatz zur Nanostrukturierung entstehen bei diesem Verfahren keine Defekte, die sich fortpflanzen könnten. Damit sollten sowohl nichtstrahlende Rekombinationskanäle als auch Aufladungseffekte der Umgebung eines Quantenpunktes nicht mehr auftreten. Weitere positive Merkmale des Konzepts sind die prinzipbedingte Positionierung des Quantenpunktes oberhalb des Zentrums einer Apertur und damit auch seine optimale Lage innerhalb der optischen Mode einer Mesa. Auch der Strompfad wird durch die oxidierte Apertur nur auf den positionierten Quantenpunkt eingeschränkt. Die erhaltenen Ergebnisse mit 25 μeV Halbwertsbreite eines trionischen Übergangs und $g^{(2)}(0) = 0{,}05$ sind vergleichbar mit den besten Resultaten selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte.

Die mittels MOVPE gewachsene Grundstruktur bestand aus einem unteren n-dotierten DBR-Spiegel mit 20 Spiegelpaaren und einer 120 nm dicken AlGaAs/AlAs/AlGaAs-Schichtfolge als zu oxidierende Apertur, die mit 75 nm

GaAs abgedeckt wurde. Darauf erzeugte man mittels UV-Lithographie eine Lackmaske mit Mesen, deren Durchmesser zwischen 22 μm und 24,8 μm in 200 nm-Schritten variierte. Nach einer 300 nm-tiefen Trockenätzung wurden die Mesen oxidiert, so dass sowohl durchoxidierte, als auch noch geöffnete Aperturen vorhanden waren. Abschließend wurde eine Quantenpunktschicht mit einer Dichte von $10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ und GaAs-Abdeckung von 160 nm abgeschieden, deren letzte 110 nm p-dotiert waren.

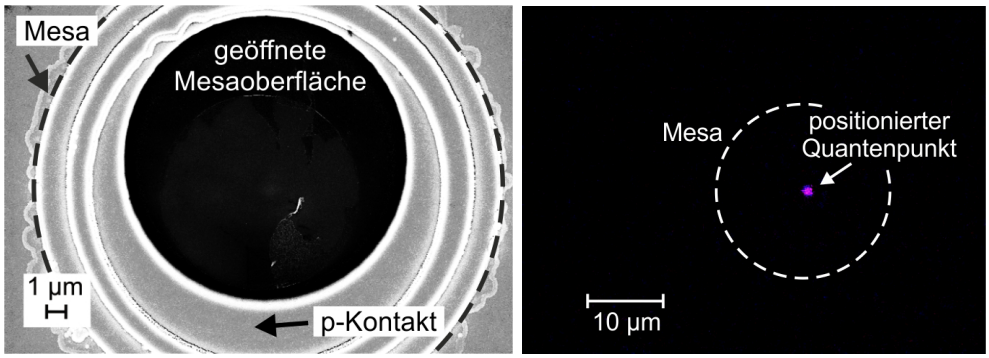


Abbildung 6.12: Links: Eine REM-Aufnahme der ersten elektrisch betriebenen Diode mit einem verspannungsinduziert vorpositionierten Quantenpunkt. Die konzentrischen Kreise sind sukzessive Ätzungen mit einem kleiner werdenden Durchmesser wie sie im Abschnitt 4.4.2 vorgestellt sind. Der letzte Prozessschritt, die Öffnung des oberen Metallkontaktes, weist eine Fehljustage auf, welche jedoch die Auskopplung nicht beeinflusst. Rechts: Eine Mikroskopaufnahme der Elektrolumineszenz des Quantenpunktes aus dem Zentrum der Diode. Die punktierte Linie markiert nicht die Öffnung im Metall, sondern die erste Mesa, die oxidiert und überwachsen wurde.

Das neue verwendete Layout der Bauelemente wurde für eine schnellere und einfachere Prototypenherstellung und höhere Packungsdichte entwickelt. Die Diode hat nur einen oberen p-Kontakt, der n-Kontakt ist auf der Rückseite des Chips vollflächig ausgeführt (s. Abschnitt 3.3.2). Die Abbildung 6.12 links zeigt eine REM-Aufnahme der Mesa mit dem oberen Metallkontakt und einer Öffnung zur Auskopplung der Elektrolumineszenz. Die eigentliche Kontaktfläche ist deutlich größer. Sie wird als Bondfläche verwendet und misst $250 \times 250\,\mu\mathrm{m}^2$ (s. Abb. 4.6). Die konzentrischen Kreise sind die im Abschnitt 4.4.2 beschriebenen Mesendefinitionen und die Kontaktöffnung im Siliziumnitrid. Der letzte Lithographieschritt zur Öffnung des p-Kontakts ist nicht optimal justiert. Das Zentrum mit dem Quantenpunkt ist jedoch offen und die Emission des positionierten Quantenpunktes wird nicht behindert. Die Mikroskopaufnahme rechts in Abb. 6.12 zeigt die Elektrolumineszenz der Diode bei 18 K und kontinuierlicher Anregung mit 1,6 V und 80 nA. Das Leuchten der Benetzungsschicht mit Wellenlängen kürzer als 930 nm wurde mittels eines Kantenfilters entfernt. Der gestrichelte Kreis markiert die erste Mesa, welche nach der Definition oxidiert und überwachsen wurde. Die Elektrolumineszenz findet im Zentrum

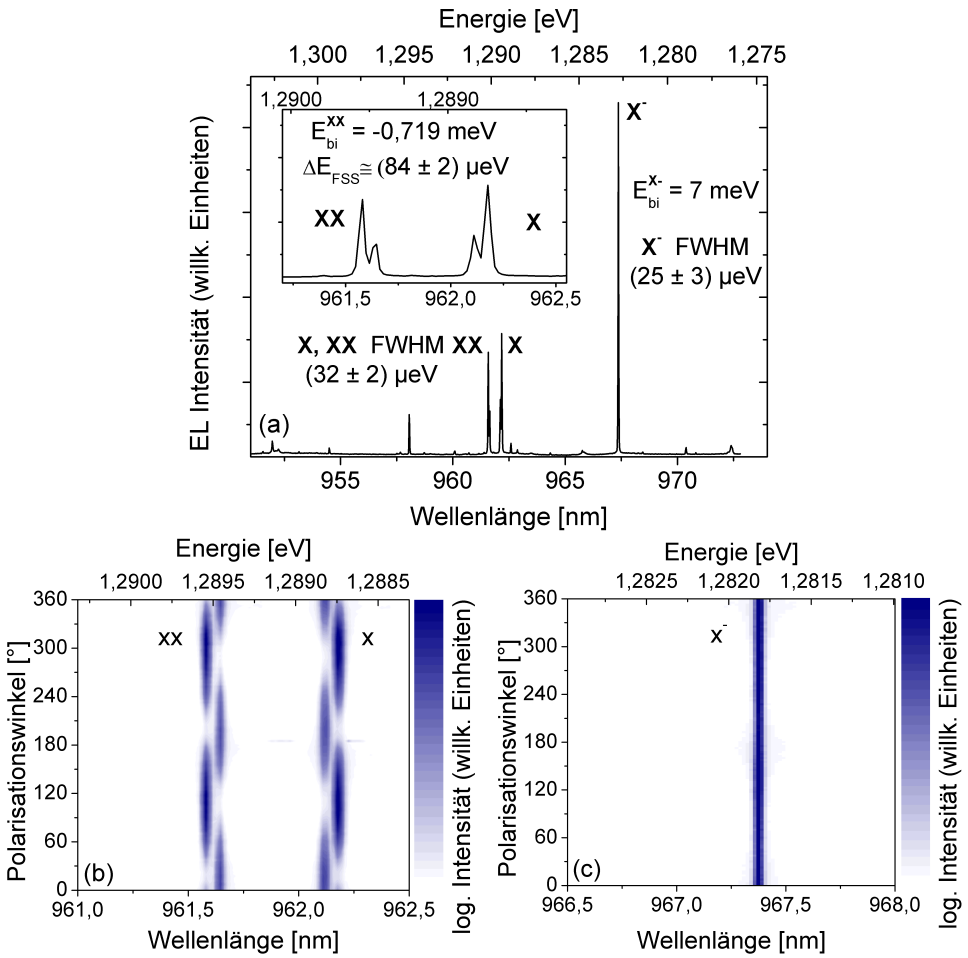


Abbildung 6.13: Die obere Abbildung (a) zeigt die spektral aufgelöste Elektrolumineszenz aus dem Zentrum der Mesa in Abb. 6.12 bei 12 K Umgebungstemperatur und einer Gleichstromanregung von 1,76 V und 0,37 μA. Die Zugehörigkeit der mit X, XX und X^- markierten Linien zu einem Quantenpunkt wurde mit Hilfe mehrere Verfahren festgestellt. Verwendet wurden die Polarisationsmessung (b), die in Abb. 6.14 gezeigte Leistungsabhängigkeit und die Vermessung der räumlich korrelierten Intensitätsabhängigkeiten (nicht gezeigt). Die exzitonischen und biexzitonischen Linien in (b) sind linear polarisiert und weisen eine symmetrische Winkelabhängigkeit auf. Das geladene Exziton X^- in (c) hat keine lineare Polarisation.

der Mesa statt und kann aufgrund der langen Emissionswellenlänge nur von einem Quantenpunkt stammen. Der Durchmesser der Apertur von 0,2 μm bis 0,4 μm wird aus der Rate und Dauer des Oxidationsprozesses abgeschätzt.

Das gemessene Elektrolumineszenzspektrum in der Abbildung 6.13 (a) entstand bei 12 K Umgebungstemperatur unter 1,76 V und 0,37 μA Gleichstromanregung. Als Mikroskopobjektiv wurde das 20X Mitutoyo Plan Apo NIR-Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,4 und einem Arbeitsabstand von

20 mm verwendet. Das Objektiv hatte einen ca. 3 μm großen Brennpunkt und begrenzte mit diesem Wert die laterale Auflösung des Aufbaus. Die mechanische Bewegung der Probe geschah mittels Schrittmotoren zur groben Positionierung. Die feinere Bewegung des Objektivs mit einer Piezosteuerung erlaubte laterale Positionsauflösung im Submikrometerbereich (s. Abb. 5.1). Der verwendete Spektrograph hatte eine Brennweite von 0,75 m und eine spektrale Auflösung von 25 μeV.

Das Spektrum in der Abbildung 6.13 (a) weist wenige Linien auf, die einem einzelnen Quantenpunkt angehören und aus dem Zentrum der Mesa stammen. Ihre Helligkeit ist vergleichbar mit den hellsten Linien der selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte in RCLED-Proben, was für eine effektive Ladungsträgerinjektion in den Quantenpunkt und wenig durch Defekte gestörte strahlende Rekombination spricht. Des Weiteren sind die gemessenen Linienbreiten von 25 μeV und 32 μeV deutlich unter den bis dahin publizierten Werten für positionierte Quantenpunkte [94–98] und die Linienbreite des geladenen Trions ist durch die Auflösung des Spektrometers von 25 μeV begrenzt. Derart geringe spektrale Diffusion wird üblicherweise nur bei den besten selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten beobachtet.

Die Abbildungen 6.13 (b) und (c) zeigen Spektren der hellsten Linien unter Veränderung der Polarisation eines Analysators vor dem Spektrographen, aufgenommen bei gleicher Temperatur und Stromanregung wie das Übersichtsspektrum. Die beiden Doppellinien um 962 nm haben nur linear polarisierte Anteile, die sich symmetrisch verhalten und somit einem Quantenpunkt zugeordnet werden können. Die Einzellinie bei 967 nm weist keine polarisationsbedingte Modulation der Intensität und keine Feinstrukturaufspaltung auf. Ihr Ursprung auf der Mesaoberfläche wurde anhand lateral aufgelöster Intensitätsprofile dem Zentrum der Mesa zugeordnet.

Anhand der Vermessung der Polarisationsabhängigkeit und weiter unten beschriebenen Leistungsabhängigkeit können die Linien dem Exziton-, Biexziton- und Trionzerfall zugeordnet werden. Die Polarisationsmessung wurde in 2,5°-Schritten durchgeführt. Die ermittelten Werte für Halbwertsbreiten, Bindungsenergien und Feinstrukturaufspaltung sind Mittelwerte der gefitteten Parameter, die für jede der 144 aufgenommenen Polarisatorstellungen ermittelt wurden. Die so erhaltene Bindungsenergie des Biexzitons beträgt 0,72 meV und des Trions 7 meV. Für die Feinstrukturaufspaltung ergibt die Auswertung der Polarisationsabhängigkeit 84 μeV. Die Werte stimmen sehr gut überein mit der statistischen Analyse der Abhängigkeit zwischen Emissionswellenlängen der möglichen Übergänge und der Größe eines Quantenpunktes, die bereits 2005 in der Arbeitsgruppe durchgeführt wurde [99].

Die Identifikation der Ladung eines Trions ist nicht trivial, die Zuordnung geschah wie in [99] indirekt anhand der epitaktischen Struktur. Die Intensität eines Trion-Übergangs ist abhängig vom Dotierlevel, dem Abstand der dotierten Schichten zum Quantenpunkt und Beweglichkeit der entsprechenden Ladungsträger. Bei vergleichbaren Dotierleveln betrugen die Abstände zum p-

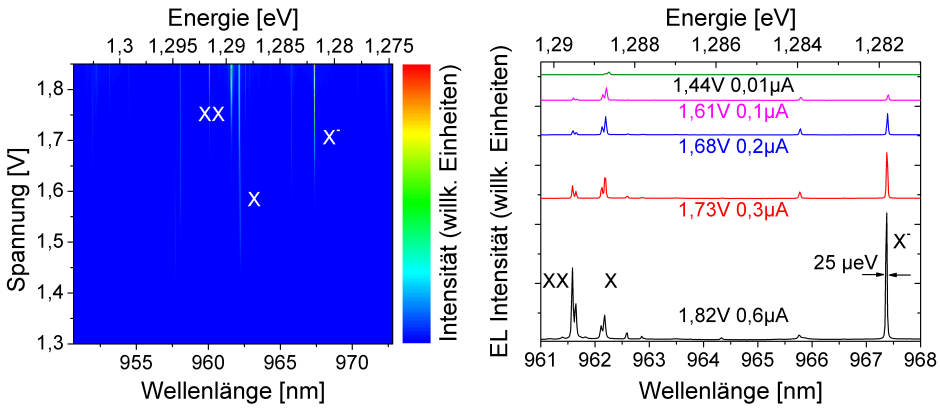


Abbildung 6.14: Die linke Abbildung zeigt eine spektral aufgelöste Elektrolumineszenzaufnahme aus dem Zentrum der Mesa in Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Die Messungen wurden am Bauelement aus Abb. 6.12 bei einer Bauelementtemperatur von 12,5 K durchgeführt. Trotz hoher Pumpleistungen sind neben den markierten Übergängen nur wenige sehr schwache Linien sichtbar. In der rechten Abbildung sind fünf definierte Anregungszustände dargestellt. Sie erlauben eine bessere Wiedergabe der Intensitäten der markierten Linien in Abhängigkeit vom angelegten Strom. Bei kleinen Strömen erscheint die Exzitonlinie, welche um 0,2 μA sättigt. Bereits um 0,1 μA treten die Biexziton- und Trionlinie auf. Im Gegensatz zur Trionlinie skaliert die Intensität der Biexzitonlinie superlinear mit dem Strom.

und n-dotierten Bereich 43 nm und 47 nm. Die Beweglichkeit von Elektronen im undotierten GaAs ist aber um Faktor 20 höher.

Die Spannungsreihe in der Abbildung 6.14 links zeigt aufgereihte Übersichtsspektren zwischen 951 nm und 973 nm aufgenommen an der Stelle der Apertur für Spannungen und Ströme im Bereich von 1,3 V bis 1,85 V und 0 μA bis 0,7 μA. Die rechte Teilabbildung ist ein passend gewählter Ausschnitt zur besseren Darstellung der Abhängigkeit der Linienintensitäten von der Anregungsleistung für fünf definierte Stromflüsse. Bei einem Strom von 10 nA beobachtet man nur den exzitonischen Übergang. Mit steigendem Stromfluss treten zwei weitere Linien des biexzitonischen und trionischen Übergangs auf. Deren Erscheinen trotz eines noch nicht gesättigten exzitonischen Übergangs wird mit Hilfe der *random population*-Theorie in [100] erklärt. Bei einer Stromstärke von ca. 0,2 μA sättigt die exzitonische Linie. Die Intensität des Biexziton- und Trionübergangs steigen weiter, wobei die Zunahme der Intensität der Biexzitonlinie mit dem Strom einen superlinearen Zusammenhang aufweist [100]. Bei einem maximalen Strom von 0,7 μA sind insgesamt neun Linien sichtbar, was auf eine sehr niedrige Quantenpunktdichte in der unmittelbaren Umgebung der Apertur auf einer Fläche von ca. 7 μm^2 zurückzuführen ist.

Die hohe Intensität des Trion-Übergangs sowie die Abwesenheit benachbarter Emissionslinien waren gute Voraussetzungen für eine Vermessung der Photonenstatistik zur Bestimmung der Güte der Einzelphotonenemission. Als

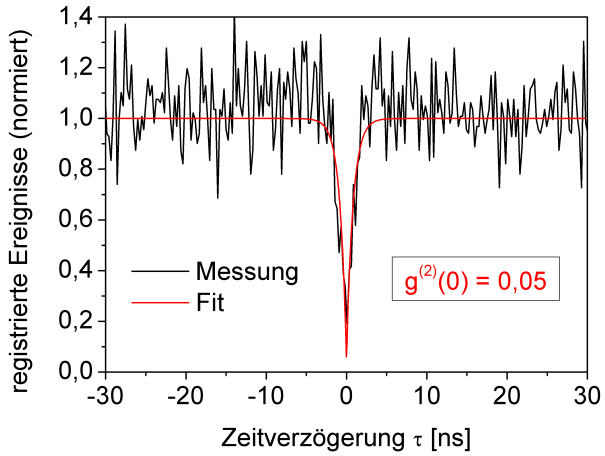


Abbildung 6.15: Eine Autokorrelationsmessung der Trionlinie X^- durchgeführt am Bauelement aus Abb. 6.12. Die Diode wurde mit 32 nA Gleichstrom bei ca. 1,74 V angeregt. Die Kryostattemperatur betrug 12,5 K. Der gefittete $g^{(2)}(0)$-Wert wurde mit 0,05 bestimmt. Unter Berücksichtigung der Zeitauflösung der SPADs von 800 ps liegt der reale $g^{(2)}(0)$-Wert bei Null. Bislang wurde weltweit kein derart klares Antibunching bei vorpositionierten Quantenpunkten beobachtet. Der Wert ist vergleichbar mit den besten Ergebnissen selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte [101].

HBT-Interferometer wurde ein glasfaserbasierter 50:50-Strahlteiler dem Spektrographen nachgeschaltet. Als Detektoren dienten zwei τ-SPAD-100 mit jeweils 0,8 ns Zeitauflösung. Bei einer Umgebungstemperatur von 12,5 K wurde die Diode mit einer Vorspannung von 1,74 V und 32 nA Gleichstrom zur Elektrolumineszenz angeregt. In der Abbildung 6.15 ist die gemessene Autokorrelationsfunktion dargestellt. Die gefittete analytische Autokorrelationsfunktion ergab einen $g^{(2)}(0)$-Parameter von 0,05. Hierbei wurde die Faltung mit der Zeitauflösung des Messsystems nicht berücksichtigt. Unter deren Einbeziehung liegt der Wert bei Null.

Alle bis dahin publizierten Ergebnisse von Einzelphotonenemission auf Basis positionierter Quantenpunkte wiesen kein derart klares Antibunching auf. Unter elektrisch betriebenen Bauelementen mit selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten liegen die besten Resultate bei $g^{(2)}(0)$=0,02 [101]. Das entwickelte und im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich in einem Bauelement umgesetzte Konzept verspannungsinduziert platzierter Quantenpunkte liefert durchaus vergleichbare Resultate und damit die erhoffte Verschmelzung der Positionskontrolle mit den hervorragenden Eigenschaften selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte. Die Positionierung des Emitters im Strompfad und gleichzeitig im Symmetriezentrum einer Mesa mit einfachen lithographischen Mitteln erlaubt nicht nur schnelle, einfache und gut mit der Wafergröße skalierbare Herstellung, sondern auch einen Einsatz in photonischen Strukturen, die auf präzise Ausrichtung des Emitters bezüglich der aktiven Mode angewiesen sind.

Im Kapitel 3 wurden zwei mögliche Weiterentwicklungen vorgestellt. Beide erlauben eine deutliche Verbesserung der Auskoppeleffizienz. Der erste Ansatz basiert auf Mikrolinsen, die oberhalb eines Quantenpunktes mittels Elektronenstrahllithographie und Trockenätzung definiert werden. Der zweite Ansatz greift das Konzept der adiabatischen Expansion des elektromagnetischen Feldes in photonischen Strukturen auf. Die durchgeführten Simulationen zeigen, dass mit drei Aperturen unterschiedlichen Durchmessers die Auskoppeleffizienz um 90 % gegenüber einem vergleichbaren RCLED-Design gesteigert werden kann. Beide Möglichkeiten können mit dem Konzept verspannungsinduziert platzierter Quantenpunkte und miteinander kombiniert und auch in einem RCLED-Design implementiert werden.

7 Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Entwicklung, Herstellung und Charakterisierung Quantenpunkt-basierter Einzelphotonenquellen, die in einem GaAs/-AlGaAs-Halbleiterschichtsystem eingebettet sind. Im besonderen Fokus der durchgeführten Forschung standen zum Einen die Wechselwirkung des Emitters mit einem Mikroresonator zur Steigerung der externen Quanteneffizienz und zum Anderen die kontrollierte Positionierung eines Emitters in der Halbleiterstruktur. Das Einbringen der Quantenpunkte in eine pin-Diodenstruktur ermöglichte es, mittels üblicher halbleitertechnischer Verfahren kontaktierbare Bauelemente herzustellen und die Einzelphotonenemission elektrisch anzuregen. Vor dem Hintergrund späterer technischer Anwendungen wurden dazu neue Technologieschritte und mehrere Bauelementdesigns entwickelt und implementiert, die drei Schlüsselkriterien erfüllen: niedriger Herstellungsaufwand, effiziente Vermessbarkeit mittels eines automatischen Messplatzes und einfache Integrierbarkeit in elektrische Schaltkreise. Die Charakterisierung dieser Bauelemente, d.h. die Vermessung ihrer Elektrolumineszenz, geschah mittels ortsaufgelöster Spektroskopie in einem Temperaturbereich von 5 K bis 60 K. Für die quantitative Bestimmung des Antibunchings, eines Maßstabs für die Güte einer Einzelphotonenquelle, wurde zudem in einer Autokorrelationsmessanordnung die Photonenstatistik für gepulste und kontinuierliche Anregung aufgenommen und ausgewertet.

Drei Ansätze zur Weiterentwicklung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle wurden im Rahmen dieser Arbeit untersucht:

- Steigerung der Auskoppeleffizienz und der Taktrate in einem Mikroresonator,
- Erhöhung der Bauelementausbeute durch kontrollierte Quantenpunktpositionierung,
- Simulation eines alternativen Ansatzes zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz basierend auf dem Effekt der adiabatischen Expansion.

Wechselwirkung der Quantenpunkte mit einem Mikroresonator. Die ersten Bauelemente mit Quantenpunkten eingebettet in einem 4/12-Mikroresonator zeigten hervorragende Resultate bezüglich externer Quanteneffizienz und Taktrate. Bei einer Resonatorgüte von 130 weist die RCLED gegenüber früherem resonatorlosen Design eine deutliche Steigerung der Intensität um bis zu Faktor 20 auf. Die Quantenemitter können gepulst bis zu einer Frequenz von 1 GHz betrieben werden. Die Vermessung der Autokorrelationsfunktion im gepulsten

Betrieb bei 1 GHz ergibt einen $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,32. Berücksichtigt man die Zeitauflösung der Messanordnung, so liegt der Wert bei Null, was eine hervorragende Einzelphotonenquelle bedeutet. Zum Zeitpunkt der Publikation [51] gab es weltweit keine weiteren Bauelemente, die im GHz-Bereich betrieben werden konnten.

Anschließend wurde der Einfluss von Mikroresonatoren mit höheren Gütefaktoren auf die Emissionseigenschaften von Quantenpunkten systematisch untersucht. Dazu wurden Bauelemente mit 5/12-, 7/13- und 9/13-Spiegelpaaren und entsprechenden Resonatorgüten von nominell (und bei 10 K am planaren Wafer gemessen) 161(131), 241(180) und 386(266) hergestellt. Die Quantenpunktdichte wurde während des Wachstums um eine Größenordnung zu höheren Werten verfehlt. Damit war die Selektion eines Bauelements mit nur einem Quantenpunkt nicht möglich. Es erleichterte jedoch die Suche nach dem Einfluss des Resonators auf die große Menge der spektral verteilten Emissionslinien aller angeregten Quantenpunkte. Die im Mittel gemessenen Werte der Intensitäten und der Autokorrelationsfunktionen an Bauelementen mit geringer Anzahl an emittierenden Quantenpunkten sind vergleichbar mit der ersten publizierten RCLED. Der Einfluss des Resonators auf die spektrale Intensitätsverteilung der Emissionslinien konnte aber nicht festgestellt werden. Die spektrale Unabhängigkeit der höheren Auskoppeleffizienz gegenüber einem resonatorlosen Design erklärt sich durch den Einsatz eines unteren Bragg-Spiegels, dessen spektrale Breite deutlich höher ist als die Breite der Resonatormode. Bei den vermessenen Bauelementen sind die Richtwirkung des Resonators [90] und Verbesserung des Purcell-Faktors aufgrund modifizierter optischer Zustandsdichte in der Resonatormode zu gering gegenüber natürlichen Schwankungen der Intensität, wie sie z. B. von QP zu QP durch ihre relative Lage zum und innerhalb eines Strompfades oder zu lokalen Defekten auftreten kann.

Kontrollierte Positionierung von Quantenpunkten innerhalb einer pin-Diodenstruktur. Die oberhalb der Quantenpunktschicht platzierte Oxidapertur dient der Selektion von idealerweise einem selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkt, indem der Stromfluss auf eine Fläche von weniger als einem Mikrometer Durchmesser eingeschränkt wird. Bei einer sehr geringen Quantenpunktdichte von $10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ sollte im Mittel nur ein der statistisch in der aktiven Zone verteilten Quantenpunkte innerhalb des Strompfades liegen. Nachteilig hierbei ist die aufgrund der statistischen Unsicherheit reduzierte Bauelementausbeute und eine notwendige genaue Kontrolle des Oxidationsprozesses.

Mit den aktuell zur Verfügung stehenden Mitteln war eine Oxidationskontrolle im sub-μm-Bereich nur durch das Anpassen des Maskenlayouts möglich. Das Problem der Herstellung einer sub-μm-Apertur bei einer Genauigkeit des Oxidationsprozesses von ca. 5 μm wurde durch zusätzliche Mesen mit einer sub-μm-Gradation des Durchmessers gelöst. Das statistische Auftauchen eines einzelnen selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunktes unterhalb einer Apertur und zusätzliche Mesen zur Kontrolle des Oxidationsprozesses verringern

jedoch die Ausbeute pro Substratfläche an Bauelementen mit einem einzelnen Quantenemitter. Der zweite Ansatz zur Weiterentwicklung der Bauelemente richtete sich deshalb auf eine laterale deterministische Platzierung eines einzelnen Quantenpunktes innerhalb der stromdurchflossenen Fläche einer pin-Diodenstruktur. Hierzu wurden zwei Verfahren untersucht.

Beim ersten Verfahren wurden Bauelemente mit nanolithographisch vorpositionierten Quantenpunkten hergestellt und untersucht. Zur Positionskontrolle wurden mittels Elektronenstrahllithographie wenige Zehn Nanometer große Löcher auf der Oberfläche definiert, welche während des anschließenden Quantenpunktwachstums als Nukleationskeime dienten. Die Positionskontrolle und die Reduktion von unerwünschten selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkten erübrigten eine sub-μm-Oxidapertur, so dass größere Aperturdurchmesser von bis zu 10 μm verwendet wurden.

Die nanolithographisch positionierten Quantenpunkte konnten erfolgreich in einem elektrisch betriebenen Bauelement eingesetzt werden. Zu der gemessenen Halbwertsbreite von 185 μeV und $g^{(2)}(0)$-Wert von 0,26 bei einem Bauelement mit einem vorpositionierten Quantenpunkt gab es zum Herstellungszeitpunkt keine vergleichbaren Publikationen.

Gleichzeitig wurde innerhalb der Arbeitsgruppe ein weiteres, neuartiges nichtinvasives Positionierungsverfahren entwickelt. Die Technologie nutzt Verspannungsanomalien der Wachstumsoberfläche als Nukleationskeime für Quantenpunktwachstum aus. Die Verspannung der Oberfläche wird durch vergrabene und oxidierte Aperturschichten hergestellt, welche anschließend mit Quantenpunkten geringer Dichte überwachsen werden. Diese Positionierungstechnologie wurde im Rahmen dieser Arbeit mitentwickelt [42] und zum ersten Mal in einem elektrisch betriebenen Bauelement erfolgreich implementiert [44]. Zusätzlich zur Positionierung bietet der verfolgte Ansatz sowohl eine ideale Ausrichtung des Emitters zum durch die Apertur begrenzten Strompfad als auch eine ideale Platzierung auf der Rotationssymmetrieachse der Mesa. Damit liegt der Emitter im Zentrum einer möglichen optischen Mode.

Das nichtinvasive und damit defektfreie Verfahren ist eine Verbindung der Positionskontrolle mit den hervorragenden Eigenschaften selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte. Sowohl die gemessenen Linienbreiten von 25 μeV und 32 μeV als auch das Antibunching der Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung von $g^{(2)}(0) = 0,05$ sind vergleichbar mit den besten Resultaten selbstorganisiert gewachsener Quantenpunkte [101]. Das neue Positionierungsverfahren zeigt großes Potential für kostengünstige Massenproduktion von Quantenemittern hoher Güte.

Ausnutzung des Effekts der adiabatischen Expansion zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz. Der mögliche Einsatz und Effektivität der adiabatischen Expansion [59] in einer RCLED-Struktur wurde mittels Simulationsberechnungen untersucht. Die angewandte Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich erlaubt Berechnungen der Ausbreitung elektromagnetischer Felder in Halb-

leiterschichtstrukturen mit einer oder mehreren oxidierten Aperturen. Dabei lassen sich sowohl der Gütefaktor und das Modenvolumen der untersuchten Struktur als auch die von ihr verursachte Veränderung der Auskoppeleffizienz spektral aufgelöst bestimmen.

Durch den Einsatz mehrerer niedrigbrechender oxidierter Aperturen war es möglich, den Effekt der adiabatischen Expansion in einer RCLED-Struktur zu erzeugen. Die durchgeführten Simulationsrechnungen mit drei Aperturen sagen eine Steigerung der Auskoppeleffizienz um 90 % gegenüber dem RCLED-Referenzdesign voraus. Gleichzeitig steigt auch die Halbwertsbreite des spektralen Bereichs um 63 %, in welchem höhere Auskoppeleffizienz beobachtet wird. Das Entfallen des oberen DBR-Spiegels hat eine Verringerung der Gesamtstrukturhöhe und damit einen geringeren Herstellungsaufwand zur Folge. Der Einsatz mehrerer Aperturen ist eine einfache und elegante Methode zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz. Die Schichtstruktur zur adiabatischen Expansion der Lichtmode kann auch in einem hybriden Ansatz mit einem oberen DBR-Spiegel, positionskontrollierten Quantenpunkten oder mit Mikrolinsen verwendet werden.

8 Ausblick

Die entwickelte Prozesstechnologie, neue Designs zur schnellen Prototypenherstellung und deren Integrierbarkeit in eine automatisierte Messanordnung, eingeführtes FDTD-Simulationsframework MEEP und erfolgreich eingesetzte Konzepte zur Positionskontrolle von Quantenpunkten bilden eine solide Basis für weiterführende Erforschung quantenpunktbasierter Halbleiterbauelemente. Die hervorragenden Eigenschaften nichtinvasiver Positionierungstechnik wie die gleichzeitige Ausrichtung eines Quantenpunkts bezüglich des Strompfades und der optischen Mode sowie seine defektfreie Umgebung sollten nach Möglichkeit mit anderen, weiter unten erwähnten Konzepten kombiniert werden. Ein generelles Problem selbstorganisiert gewachsener und platzierter Quantenpunkte ist deren schlechte Uniformität in der Größe, die eine große spektrale Verteilung der Emissionslinien verursacht. Dieser Parameter wurde bei verspannungsinduziert vorpositionierten Quantenpunkten noch nicht untersucht. Die Verbesserung der Uniformität vereinfacht die Abstimmung des Mikroresonators auf die Emissionswellenlänge und würde die Ausschussrate von RCLEDs deutlich verringern.

Aus der bislang durchgeführten systematischen Untersuchung der Kopplung eines Emitters an einen planaren optischen Mikroresonator konnte kein Einfluss des Resonators auf die Emissionseigenschaften eindeutig festgestellt werden. RCLEDs mit einem deutlich höheren Gütefaktor sollten zum Nachweis der Kopplung systematisch untersucht werden. Die Auswirkung auf die Lebensdauer des Exzitons könnte durch gepulste Elektrolumineszenz- und Photolumineszenzmessungen direkt ermittelt werden. Das wäre nicht nur für hergestellte Gütefaktoren möglich, sondern auch für Zwischenwerte, wenn man den oberen Bragg-Spiegel mittels Trockenätzverfahren Schicht für Schicht abträgt.

Der Einsatz von Mikroresonatoren hoher Güte und damit mit einer schmalen spektralen Mode ist andererseits ineffektiv in der industriellen Massenfertigung wegen des hohen Ausschusses. Die breite spektrale Verteilung von Emissionslinien aufgrund geringer Uniformität der selbstorganisierten Quantenpunkte sowie die schmale spektrale Mode eines Resonators hoher Güte bedeuten eine geringe Wahrscheinlichkeit für einen Überlapp der Mode und einer einzelnen Emissionslinie. Einen Ausweg bieten Mikrolinsen, welche spektral unabhängig die Auskoppeleffizienz steigern. Die Unabhängigkeit ergibt sich aus rein geometrischer Betrachtung: Der Grenzwinkel der Totalreflexion am GaAs-Luft-Übergang der Linse wird größer und sie bündelt gleichzeitig das ausgekoppelte Licht [40]. Mikrolinsen sind besonders geeignet für einen Einsatz mit verspannungsinduziert vorpositionierten Quantenpunkten, weil diese nur im Zentrum einer Mesa nukleieren.

Ein von Gregersen *et al.* in [58] publizierter vielversprechender Ansatz, welcher die adiabatische Expansion des elektromagnetischen Feldes in ein niedrigbrechendes Medium zur Verbesserung der Auskoppeleffizienz ausnutzt, war Anlass, seine Anwendung in einer Resonatorstruktur zunächst mittels einer Simulation zu untersuchen. Die durchgeführten dreidimensionalen Modellierungen mit dem frei verfügbaren Programmpaket MEEP, einer freien Implementierung der Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich, haben ergeben, dass bei Verwendung von nur drei oxidierten Aperturen gegenüber einer RCLED mit neun oberen Spiegelpaaren sowohl die Halbwertsbreite des verstärkten spektralen Bereichs als auch die Auskoppeleffizienz gesteigert werden können. Die Struktur zur adiabatischen Auskopplung des Feldes kann zusammen mit vorpositionierten Quantenpunkten und Mikrolinsen eingesetzt werden. Ihre Herstellung bedarf einer technologischen Weiterentwicklung des Oxidationsprozesses. Mögliche Ansätze sind die Entwicklung eines Versiegelungsschrittes für eine bereits oxidierte Apertur oder genauere Kontrolle von Oxidationsraten mittels Aluminiumgehalts einer AlGaAs-Aperturschicht oder ihrer Dicke.

Die Integration von Einzelphotonenemittern mit Emissionswellenlängen zwischen 900 nm und 1000 nm in handelsübliche Lichtwellenleitersysteme leidet unter einer höheren Absorption des Signals. Erste Experimente an Bauelementen mit zum O-Band (1260 nm bis 1360 nm) verschobener Quantenpunktemission wurden bereits durchgeführt, waren jedoch nicht erfolgreich, weil die gemessenen Spektren breitbandige Emission und keine scharfen Linien aufwiesen. Die Schwierigkeit liegt in der kontrollierten Abscheidung von großen Quantenpunkten geringer Dichte. Aufgrund der auftretenden Schwankungen der Wachstumsparameter liegt ihre Herstellung an der Grenze des zur Zeit technisch Machbaren. Das hohe Anwendungspotential innerhalb bestehender optischer Netzwerke rechtfertigt jedoch die Bemühungen, welche fortgesetzt werden sollten.

Die Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade kann zur Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen ausgenutzt werden, wenn die Feinstrukturaufspaltung des exzitonischen Zustandes geringer ist als die Linienbreite des Übergangs. Eine halbleiterbasierte Quelle verschränkter Photonen wäre ein großer Schritt auf dem Weg zu Quantenrepeatern und Quantennetzwerken. Die Ursache der Feinstruktur liegt in einer Anisotropie des Quantenpunktpotentials und damit verbundenen anisotropen Anteilen der Austauschwechselwirkung. Die Symmetriereduktion des Potentials zu Punktgruppe C_{2v} tritt beim Wachstum auf GaAs(001)-Oberfläche auf und wird durch Quantenpunktform, auftretende mechanische Verspannungen und piezoelektrische Felder bedingt. Quantenpunkte auf einem (111)-Substrat haben eine höhere C_{3v}-Symmetrie und sollten deshalb keine Feinstrukturaufspaltung aufweisen. Die erfolgten Untersuchungen [102, 103] sollten weitergeführt werden.

Literaturverzeichnis

[1] Z. Yuan, „Electrically Driven Single-Photon Source," *Science*, Vol. 295, Nr. 5552, S. 102–105, 2001.

[2] 3way Labs, „Number of Hosts advertised in the DNS," 12.08.2013. [Online]. Available: http://ftp.isc.org/www/survey/reports/2013/07/

[3] Ericsson, „Ericsson Mobility Report - November 2013," 04.11.2013. [Online]. Available: http://www.ericsson.com/res/docs/2013/ericsson-mobility-report-november-2013.pdf

[4] C. E. Shannon, „Communication Theory of Secrecy Systems*," *Bell System Technical Journal*, Vol. 28, Nr. 4, S. 656–715, 1949.

[5] W. K. Wootters und W. H. Zurek, „A single quantum cannot be cloned," *Nature*, Vol. 299, Nr. 5886, S. 802–803, 1982.

[6] M. Scully und W. Lamb, „Quantum Theory of an Optical Maser. I. General Theory," *Physical Review*, Vol. 159, Nr. 2, S. 208–226, 1967.

[7] H. Kimble, M. Dagenais, und L. Mandel, „Photon Antibunching in Resonance Fluorescence," *Physical Review Letters*, Vol. 39, Nr. 11, S. 691–695, 1977.

[8] S. Singh, „Antibunching, sub-poissonian photon statistics and finite bandwidth effects in resonance fluorescence," *Optics Communications*, Vol. 44, Nr. 4, S. 254–258, 1983.

[9] M. Lax, „Formal Theory of Quantum Fluctuations from a Driven State," *Physical Review*, Vol. 129, Nr. 5, S. 2342–2348, 1963.

[10] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoğlu, W. Schoenfeld, P. Petroff, L. Zhang, und E. Hu, „Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot," *Physical Review B*, Vol. 63, Nr. 12, 2001.

[11] N. Herbert, „FLASH? A superluminal communicator based upon a new kind of quantum measurement," *Foundations of Physics*, Vol. 12, Nr. 12, S. 1171–1179, 1982.

[12] C. H. Bennett und G. Brassard, „Quantum Cryptography: Public Key Distribution and Coin Tossing," in *Proceedings of the IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing*. New York: IEEE Press, 1984, S. 175–179.

[13] C. Bennett, „Quantum cryptography using any two nonorthogonal states," *Physical Review Letters*, Vol. 68, Nr. 21, S. 3121–3124, 1992.

[14] A. K. Ekert, „Quantum cryptography based on Bell's theorem," *Physical Review Letters*, Vol. 67, Nr. 6, S. 661–663, 1991.

[15] J. Clauser, „Experimental distinction between the quantum and classical field-theoretic predictions for the photoelectric effect," *Physical Review D*, Vol. 9, Nr. 4, S. 853–860, 1974.

[16] F. Diedrich und H. Walther, „Nonclassical radiation of a single stored ion," *Physical Review Letters*, Vol. 58, Nr. 3, S. 203–206, 1987.

[17] N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, und S. Yamasaki, „Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond," *Nature Photonics*, Vol. 6, Nr. 5, S. 299–303, 2012.

[18] ID Quantique, „Quantum Computers and Quantum-Safe Crypto: Do commercial QKD products exist?" [Online]. Available: http://www.idquantique.com/quantum-safe-crypto/technology/qkd.html

[19] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N. Ledentsov, Z. Alferov, P. Kop'ev, und V. Ustinov, „InGaAs-GaAs quantum-dot lasers," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. 3, Nr. 2, S. 196–205, 1997.

[20] M. Grundmann, O. Stier, und D. Bimberg, „InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure," *Physical Review B*, Vol. 52, Nr. 16, S. 11 969–11 981, 1995.

[21] M. A. Reed, „Spatial quantization in GaAs–AlGaAs multiple quantum dots," *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, Vol. 4, Nr. 1, S. 358, 1986.

[22] D. Bimberg, „Quantum dots: Paradigm changes in semiconductor physics," *Semiconductors*, Vol. 33, Nr. 9, S. 951–955, 1999.

[23] D. Bimberg, M. Grundmann, und N. N. Ledentsov, *Quantum dot heterostructures*. Chichester [England] and New York: John Wiley, 1999.

[24] D. Bimberg, „Quantum dots for lasers, amplifiers and computing," *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 38, Nr. 13, S. 2055–2058, 2005.

[25] M. Shur, M. E. Levinshtein, und S. L. Rumyantsev, *Handbook series on semiconductor parameters*. Singapore [etc.]: World Scientific, 1996-1999.

[26] B. Min, S. Massidda, und A. Freeman, „Structural and electronic properties of bulk GaAs, bulk AlAs, and the (GaAs)1(AlAs)1 superlattice," *Physical Review B*, Vol. 38, Nr. 3, S. 1970–1977, 1988.

[27] M. Sturge, „Optical Absorption of Gallium Arsenide between 0.6 and 2.75 eV," *Physical Review*, Vol. 127, Nr. 3, S. 768–773, 1962.

[28] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N. Ledentsov, A. Kovsh, V. Ustinov, und D. Bimberg, „Strain engineering of self-organized InAs quantum dots," *Physical Review B*, Vol. 64, Nr. 8, 2001.

[29] F. Guffarth, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, und D. Bimberg, „Many-particle effects in self-organized quantum dots," *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, Vol. 25, Nr. 2-3, S. 261–270, 2004.

[30] O. Stier, M. Grundmann, und D. Bimberg, „Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k·p theory," *Physical Review B*, Vol. 59, Nr. 8, S. 5688–5701, 1999.

[31] M. Feucker, R. Seguin, S. Rodt, A. Hoffmann, und D. Bimberg, „Decay dynamics of neutral and charged excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots," *Applied Physics Letters*, Vol. 92, Nr. 6, S. 063116, 2008.

[32] M. Nirmal, D. Norris, M. Kuno, M. Bawendi, A. Efros, und M. Rosen, „Observation of the "Dark Exciton" in CdSe Quantum Dots," *Physical Review Letters*, Vol. 75, Nr. 20, S. 3728–3731, 1995.

[33] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. Pohl, und D. Bimberg, „Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots," *Physical Review Letters*, Vol. 95, Nr. 25, 2005.

[34] S. Rodt, R. Seguin, A. Schliwa, F. Guffarth, K. Pötschke, U. Pohl, und D. Bimberg, „Size-dependent binding energies and fine-structure splitting of excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots," *Journal of Luminescence*, Vol. 122-123, S. 735–739, 2007.

[35] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, und D. Bimberg, „Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots," *Physical Review B*, Vol. 76, Nr. 20, 2007.

[36] P. D. Buckle, P. Dawson, S. A. Hall, X. Chen, M. J. Steer, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, und M. Hopkinson, „Photoluminescence decay time measurements from self-organized InAs/GaAs quantum dots," *Journal of Applied Physics*, Vol. 86, Nr. 5, S. 2555, 1999.

[37] E. Purcell, H. Torrey, und R. Pound, „Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid," *Physical Review*, Vol. 69, Nr. 1-2, S. 37–38, 1946.

[38] J. P. Reithmaier, G. Sęk, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, und A. Forchel, „Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system," *Nature*, Vol. 432, Nr. 7014, S. 197–200, 2004.

[39] A. Imamoğlu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, und A. Small, „Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED," *Physical Review Letters*, Vol. 83, Nr. 20, S. 4204–4207, 1999.

[40] M. Gschrey, M. Seifried, L. Krüger, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Burger, S. Rodt, F. Schmidt, A. Strittmatter, und S. Reitzenstein, „Enhanced photon-extraction efficiency from deterministic quantum-dot microlenses," *ArXiv e-prints*, 2013.

[41] M. Gschrey, F. Gericke, A. Schüßler, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter, und S. Reitzenstein, „In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy," *Applied Physics Letters*, Vol. 102, Nr. 25, S. 251113, 2013.

[42] A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, und V. Haisler, „Lateral positioning of InGaAs quantum dots using a buried stressor," *Applied Physics Letters*, Vol. 100, Nr. 9, S. 093111, 2012.

[43] A. Strittmatter, A. Holzbecher, A. Schliwa, J.-H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, und V. Haisler, „Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers," *physica status solidi (a)*, Vol. 209, Nr. 12, S. 2411–2420, 2012.

[44] W. Unrau, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl, und D. Bimberg, „Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection," *Applied Physics Letters*, Vol. 101, Nr. 21, S. 211119, 2012.

[45] W.-H. Chang, W.-Y. Chen, H.-S. Chang, T.-P. Hsieh, J.-I. Chyi, und T.-M. Hsu, „Efficient Single-Photon Sources Based on Low-Density Quantum Dots in Photonic-Crystal Nanocavities," *Physical Review Letters*, Vol. 96, Nr. 11, 2006.

[46] A. Lochmann, E. Stock, O. Schulz, F. Hopfer, D. Bimberg, V. Haisler, A. Toropov, A. Bakarov, und A. Kalagin, „Electrically driven single

quantum dot polarised single photon emitter," *Electronics Letters*, Vol. 42, Nr. 13, S. 774, 2006.

[47] M. C. Munnix, A. Lochmann, D. Bimberg, und V. A. Haisler, „Modeling Highly Efficient RCLED-Type Quantum-Dot-Based Single Photon Emitters," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 45, Nr. 9, S. 1084–1088, 2009.

[48] K. Zaki, Chen Seng-Woon, und Chen Chunming, „Modeling discontinuities in dielectric-loaded waveguides," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, Vol. 36, Nr. 12, S. 1804–1810, 1988.

[49] S. Gedney, „An anisotropic perfectly matched layer-absorbing medium for the truncation of FDTD lattices," *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, Vol. 44, Nr. 12, S. 1630–1639, 1996.

[50] P. Bienstman, „CAMFR Home Page," 20.09.2007. [Online]. Available: http://camfr.sourceforge.net/index.html

[51] A. Lochmann, E. Stock, J. Töfflinger, W. Unrau, A. Toropov, A. Bakarov, V. Haisler, und D. Bimberg, „Electrically pumped, micro-cavity based single photon source driven at 1 GHz," *Electronics Letters*, Vol. 45, Nr. 11, S. 566, 2009.

[52] D. S. L. Mui, D. Leonard, L. A. Coldren, und P. M. Petroff, „Surface migration induced self-aligned InAs islands grown by molecular beam epitaxy," *Applied Physics Letters*, Vol. 66, Nr. 13, S. 1620, 1995.

[53] M. Mehta, D. Reuter, A. D. Wieck, S. Michaelis de Vasconcellos, A. Zrenner, und C. Meier, „An intentionally positioned (In,Ga)As quantum dot in a micron sized light emitting diode," *Applied Physics Letters*, Vol. 97, Nr. 14, S. 143101, 2010.

[54] S. Faure, M. Nishioka, S. Ishida, D. Guimard, und Y. Arakawa, „Metal Organic Chemical Vapor Deposition Growth of High Spectral Quality Site-Controlled InAs Quantum Dots Using In situ Patterning," *Applied Physics Express*, Vol. 4, Nr. 11, S. 112001, 2011.

[55] C. Schneider, A. Huggenberger, M. Gschrey, P. Gold, S. Rodt, A. Forchel, S. Reitzenstein, S. Höfling, und M. Kamp, „In(Ga)As/GaAs site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality," *physica status solidi (a)*, Vol. 209, Nr. 12, S. 2379–2386, 2012.

[56] A. Auffèves, D. Gerace, J.-M. Gérard, M. F. Santos, L. C. Andreani, und J.-P. Poizat, „Controlling the dynamics of a coupled atom-cavity system by pure dephasing," *Physical Review B*, Vol. 81, Nr. 24, 2010.

[57] M. J. Holmes, K. Choi, S. Kako, M. Arita, und Y. Arakawa, „Room-Temperature Triggered Single Photon Emission from a III-Nitride Site-Controlled Nanowire Quantum Dot," *Nano Letters*, Vol. 14, Nr. 2, S. 982–986, 2014.

[58] N. Gregersen, T. R. Nielsen, J. Mørk, J. Claudon, und J.-M. Gérard, „Designs for high-efficiency electrically pumped photonic nanowire single-photon sources," *Optics Express*, Vol. 18, Nr. 20, S. 21204, 2010.

[59] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, und J.-M. Gérard, „A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire," *Nature Photonics*, Vol. 4, Nr. 3, S. 174–177, 2010.

[60] J.-P. Berenger, „A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves," *Journal of Computational Physics*, Vol. 114, Nr. 2, S. 185–200, 1994.

[61] I. Abram, I. Robert, und R. Kuszelewicz, „Spontaneous emission control in semiconductor microcavities with metallic or Bragg mirrors," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 34, Nr. 1, S. 71–76, 1998.

[62] J. P. Dowling, „Spontaneous emission in cavities: How much more classical can you get?" *Foundations of Physics*, Vol. 23, Nr. 6, S. 895–905, 1993.

[63] M. Polyanskiy, „Refractive index database." [Online]. Available: http://refractiveindex.info

[64] Y.-C. Chang und L. A. Coldren, „Efficient, High-Data-Rate, Tapered Oxide-Aperture Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. 15, Nr. 3, S. 704–715, 2009.

[65] F. C. Frank und J. H. van der Merwe, „One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory," *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol. 198, Nr. 1053, S. 205–216, 1949.

[66] M. Volmer und A. Weber, „Nucleus formation in supersaturated systems." *Z. Physik. Chem.*, Nr. 119, S. 277–301, 1926.

[67] I. N. Stranski und L. Krastanow, „Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander," *Monatshefte für Chemie*, Vol. 71, Nr. 1, S. 351–364, 1937.

[68] V. Shchukin, N. Ledentsov, P. Kop'ev, und D. Bimberg, „Spontaneous Ordering of Arrays of Coherent Strained Islands," *Physical Review Letters*, Vol. 75, Nr. 16, S. 2968–2971, 1995.

[69] K. Pötschke, L. Müller-Kirsch, R. Heitz, R. Sellin, U. Pohl, D. Bimberg, N. Zakharov, und P. Werner, „Ripening of self-organized InAs quantum dots," *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, Vol. 21, Nr. 2-4, S. 606–610, 2004.

[70] T. J. Krzyzewski und T. S. Jones, „Ripening and annealing effects in InAs/GaAs(001) quantum dot formation," *Journal of Applied Physics*, Vol. 96, Nr. 1, S. 668, 2004.

[71] H. Eisele, A. Lenz, C. Hennig, R. Timm, M. Ternes, und M. Dähne, „Atomic structure of InAs and InGaAs quantum dots determined by cross-sectional scanning tunneling microscopy," *Journal of Crystal Growth*, Vol. 248, S. 322–327, 2003.

[72] T. Takamori, K. Takemasa, und T. Kamijoh, „Interface structure of selectively oxidized AlAs/GaAs," *Applied Physics Letters*, Vol. 69, Nr. 5, S. 659, 1996.

[73] R. L. Sellin, I. Kaiander, D. Ouyang, T. Kettler, U. W. Pohl, D. Bimberg, N. D. Zakharov, und P. Werner, „Alternative-precursor metalorganic chemical vapor deposition of self-organized InGaAs/GaAs quantum dots and quantum-dot lasers," *Applied Physics Letters*, Vol. 82, Nr. 6, S. 841, 2003.

[74] W. Macherzyński, M. Wośko, B. Paszkiewicz, B. Ściana, R. Paszkiewicz, und M. Tłaczała, „Fabrication of ohmic contact based on platinum to p-type compositionally graded AlGaAs layers," *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 146, S. 012034, 2009.

[75] J. M. Dallesasse, N. El-Zein, N. Holonyak, K. C. Hsieh, R. D. Burnham, und R. D. Dupuis, „Environmental degradation of AlxGa1−xAs-GaAs quantum-well heterostructures," *Journal of Applied Physics*, Vol. 68, Nr. 5, S. 2235, 1990.

[76] J. M. Dallesasse, N. Holonyak, A. R. Sugg, T. A. Richard, und N. El-Zein, „Hydrolyzation oxidation of AlxGa1−xAs-AlAs-GaAs quantum well heterostructures and superlattices," *Applied Physics Letters*, Vol. 57, Nr. 26, S. 2844, 1990.

[77] K. Choquette, K. Geib, C. Ashby, R. Twesten, O. Blum, H. Hou, D. Follstaedt, B. Hammons, D. Mathes, und R. Hull, „Advances in selective wet oxidation of AlGaAs alloys," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. 3, Nr. 3, S. 916–926, 1997.

[78] R. Y. Li, Z. G. Wang, B. Xu, P. Jin, X. Guo, und M. Chen, „Time dependence of wet oxidized AlGaAs/GaAs distributed Bragg reflectors," *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, Vol. 23, Nr. 5, S. 2137, 2005.

[79] C. I. H. Ashby, M. M. Bridges, A. A. Allerman, B. E. Hammons, und H. Q. Hou, „Origin of the time dependence of wet oxidation of AlGaAs," *Applied Physics Letters*, Vol. 75, Nr. 1, S. 73, 1999.

[80] H. Q. Jia, H. Chen, W. C. Wang, W. X. Wang, W. Li, Q. Huang, J. Zhou, und Q. K. Xue, „Improved thermal stability of wet-oxidized AlAs," *Applied Physics Letters*, Vol. 80, Nr. 6, S. 974, 2002.

[81] R. D. Twesten, D. M. Follstaedt, und K. D. Choquette, „Microstructure and interface properties of laterally oxidized AlxGa1- xAs," *Proc. SPIE*, Vol. 3003, 1997. [Online]. Available: http://dx.doi.org/10.1117/12.271072

[82] R. D. Twesten, D. M. Follstaedt, K. D. Choquette, und R. P. Schneider, „Microstructure of laterally oxidized AlxGa1−xAs layers in vertical-cavity lasers," *Applied Physics Letters*, Vol. 69, Nr. 1, S. 19, 1996.

[83] E. Guillotel, C. Langlois, F. Ghiglieno, G. Leo, und C. Ricolleau, „TEM characterization of oxidized AlGaAs/AlAs nonlinear optical waveguides," *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 43, Nr. 38, S. 385302, 2010.

[84] O. Durand, F. Wyckzisk, J. Olivier, M. Magis, P. Galtier, A. d. Rossi, M. Calligaro, V. Ortiz, V. Berger, G. Leo, und G. Assanto, „Contraction of aluminum oxide thin layers in optical heterostructures," *Applied Physics Letters*, Vol. 83, Nr. 13, S. 2554, 2003.

[85] K. D. Choquette, K. M. Geib, H. C. Chui, H. Q. Hou, und R. Hull, „Selective Oxidation of Buried Aigaas for Fabrication of Vertical-Cavity Lasers," *MRS Proceedings*, Vol. 421, 1996.

[86] I. Suárez, G. Almuneau, M. Condé, A. Arnoult, und C. Fontaine, „Optimal control of AlAs oxidation via digital alloy heterostructure compositions," *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 42, Nr. 17, S. 175105, 2009.

[87] G. Franz, *Oberflächentechnologie mit Niederdruckplasmen: Beschichten und Strukturieren in der Mikrotechnik.* Springer, 1994.

[88] W. Spicer, P. Chye, C. Garner, I. Lindau, und P. Pianetta, „The surface electronic structure of 3–5 compounds and the mechanism of Fermi level pinning by oxygen (passivation) and metals (Schottky barriers)," *Surface Science*, Vol. 86, S. 763–788, 1979.

[89] W. Spicer, I. Lindau, P. Skeath, C. Su, und P. Chye, „Unified Mechanism for Schottky-Barrier Formation and III-V Oxide Interface States," *Physical Review Letters*, Vol. 44, Nr. 6, S. 420–423, 1980.

[90] H. Benisty, H. d. Neve, und C. Weisbuch, „Impact of planar microcavity effects on light extraction-Part I: basic concepts and analytical trends," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 34, Nr. 9, S. 1612–1631, 1998.

[91] F. Albert, S. Stobbe, C. Schneider, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, P. Lodahl, L. Worschech, und A. Forchel, „Quantum efficiency and oscillator strength of site-controlled InAs quantum dots," *Applied Physics Letters*, Vol. 96, Nr. 15, S. 151102, 2010.

[92] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sünner, T. Heindel, M. Strauß, S. Göpfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, und A. Forchel, „Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration," *Nanotechnology*, Vol. 20, Nr. 43, S. 434012, 2009.

[93] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, T. A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling, und M. Kamp, „Microcavity enhanced single photon emission from an electrically driven site-controlled quantum dot," *Applied Physics Letters*, Vol. 100, Nr. 9, S. 091108, 2012.

[94] C. Taylor, E. Marega, E. A. Stach, G. Salamo, L. Hussey, M. Muñoz, und A. Malshe, „Directed self-assembly of quantum structures by nanomechanical stamping using probe tips," *Nanotechnology*, Vol. 19, Nr. 1, S. 015301, 2008.

[95] P. Atkinson, O. G. Schmidt, S. P. Bremner, und D. A. Ritchie, „Formation and ordering of epitaxial quantum dots," *Comptes Rendus Physique*, Vol. 9, Nr. 8, S. 788–803, 2008.

[96] J. Skiba-Szymanska, A. Jamil, I. Farrer, M. B. Ward, C. A. Nicoll, D. J. P. Ellis, J. P. Griffiths, D. Anderson, G. A. C. Jones, D. A. Ritchie, und A. J. Shields, „Narrow emission linewidths of positioned InAs quantum dots grown on pre-patterned GaAs(100) substrates," *Nanotechnology*, Vol. 22, Nr. 6, S. 065302, 2011.

[97] M. Felici, P. Gallo, A. Mohan, B. Dwir, A. Rudra, und E. Kapon, „Site-Controlled InGaAs Quantum Dots with Tunable Emission Energy," *Small*, Vol. 5, Nr. 8, S. 938–943, 2009.

[98] A. Huggenberger, S. Heckelmann, C. Schneider, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, und A. Forchel, „Narrow spectral linewidth from single site-controlled In(Ga)As quantum dots with high uniformity," *Applied Physics Letters*, Vol. 98, Nr. 13, S. 131104, 2011.

[99] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth, und D. Bimberg, „Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots," *Physical Review B*, Vol. 71, Nr. 15, 2005.

[100] M. Grundmann und D. Bimberg, „Theory of random population for quantum dots," *Physical Review B*, Vol. 55, Nr. 15, S. 9740–9745, 1997.

[101] R. B. Patel, A. J. Bennett, K. Cooper, P. Atkinson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, und A. J. Shields, „Quantum interference of electrically generated single photons from a quantum dot," *Nanotechnology*, Vol. 21, Nr. 27, S. 274011, 2010.

[102] D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann, A. Schliwa, J. Töfflinger, W. Unrau, M. Munnix, S. Rodt, V. Haisler, A. Toropov, A. Bakarov, und A. Kalagin, „Quantum Dots for Single- and Entangled-Photon Emitters," *IEEE Photonics Journal*, Vol. 1, Nr. 1, S. 58–68, 2009.

[103] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, A. Lochmann, E. Stock, und D. Bimberg, „In(Ga)As/GaAs quantum dots grown on a (111) surface as ideal sources of entangled photon pairs," *Physical Review B*, Vol. 80, Nr. 16, 2009.

Danksagung

Die vorliegende Forschungsarbeit entstand am Institut für Festkörperphysik in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Dieter Bimberg mit der Unterstützung vieler Kollegen und Freunden, denen ich hiermit herzlich danken möchte.

In erster Linie gilt mein ganz besonderer Dank Herrn Prof. Dr. Dieter Bimberg für die Möglichkeit der Promotion in einem zukunftsweisenden Bereich der Halbleiter-Nanophotonik und für die Möglichkeit eigenverantwortlicher Nutzung einer erstklassigen Reinraumausstattung und optischer Laboratorien. Ohne seine Unterstützung und das entgegengebrachte Vertrauen wäre das Verfahren der verspannungsinduzierten Quantenpunktplatzierung nicht entdeckt worden.

Herrn Prof. Dr. Stephan Reitzenstein danke ich für die problemlose, vorbildliche und sehr erfolgreiche Kooperation und den persönlich ausgeführten Griff in der richtigen Minute.

Herrn Dr. André Strittmatter bin ich zu großem Dank verpflichtet für die brillanten Ideen und die dezent-unaufdringliche notorisch-penetrante Motivation, die im Endeffekt zu großartigen Ergebnissen führte.

Ich danke Herrn Dr. Anatol Lochmann für die Einführung in die Prozesstechnik und seine Unterstützung im Reinraum. Bei den Kollegen Dr. Erik Stock, Jan Amaru Töfflinger, Ole Hitzemann, Murat Öztürk, Dr. Tobias Heindel, Pierce Munnelly, Alexander Schlehahn, Lisa Schneiderwind und Luzy Krüger möchte ich mich ganz herzlich für die Anleitung und eine symbiotische Zusammenarbeit in den optischen Laboratorien bedanken. Kein Bauelement wäre entstanden ohne die Hilfe der Menschen in Pressluftatmern. Dafür danke ich meinen Kollegen Jan-Hindrik Schulze und David Quandt. Insbesondere möchte ich mich für die Ideenfindung und eine großartige Kooperation beim Herrn Prof. Dr. Vladimir Haisler und seinen Mitarbeitern bedanken. Für den freundlichen Umgang, anregende Diskussionen und nicht zuletzt das großzügige Aufteilen der Rechenkerne am Linux-Cluster möchte ich mich bei Dr. Andrei Schliwa, Gerald Hönig und Dr. Vladimir Kalosha bedanken. Ich danke Herrn Manuel Gschrey für die gute Zusammenarbeit, die gemeinsame Durchführung einiger Messungen und für die Diskussionen über die erzielten Ergebnisse. Mein weiterer Dank gilt den Kollegen Gunter Larisch und Philip Moser für ihre Hilfe bei den Korrekturen sowie für ihre Bemühungen um meine körperliche Fitness.

Einen besonderen Dank bin ich meinen Freunden Alexander Jelzow und Markus Radszuweit schuldig sowohl für ihren selbstlosen Einsatz bei der Korrektur dieser Arbeit als auch für die jahrelange Freundschaft und Unterstützung.

Mein unausgesprochener Dank gilt auch all jenen, die ich zu dieser späten Stunde vergessen habe zu erwähnen.

Jedoch war, ist und bleibt die wichtigste Unterstützung stets meine Familie.